

Forschungsbericht 2009-16

**Beobachtungsoperator zur
Assimilation satellitenbasierter
Messungen verschiedener Aerosol-
typen in ein Chemie- Transportmodell**

Marion Schroedter-Homscheidt

Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt
Deutsches Fernerkundungsdatenzentrum
Oberpfaffenhofen



DLR Deutsches Zentrum
für Luft- und Raumfahrt e.V.
in der Helmholtz-Gemeinschaft

ISSN 1434-8454
ISRN DLR-FB--2009-16

ISRN DLR-FB--2009-16

M. Schroedter- Homscheidt

Aerosol, Aerosoltyp, Chemie-Transport-Modell, Datenassimilation, variationelle Assimilation

Marion SCHROEDTER-HOMSCHEIDT

Deutsches Fernerkundungsdatenzentrum des DLR, Oberpfaffenhofen

Beobachtungsoperator zur Assimilation satellitenbasierter Messungen verschiedener Aerosoltypen in ein Chemie-Transportmodell

Dissertation Universität zu Köln

DLR-Forschungsbericht 2009-16, 2009, 94 Seiten, 53 Bilder, 14 Tabellen, 165 Literaturstellen, 29,00 € zzgl. MwSt.

In der Wettervorhersage konnte durch die Assimilation von Satellitenbeobachtungen eine erhebliche Verbesserung der Prognosegenauigkeit erzielt werden. Bei der Vorhersage von Aerosolpartikeln mit Chemie-Transport-Modellen herrscht derzeit die Modellierung basierend auf statischen Emissionskatastern vor, mit denen episodische Ereignisse nicht modelliert werden können. Ziel dieser Arbeit ist die Entwicklung eines Beobachtungsoperators für die komponentenweise Assimilation von Satellitenbeobachtungen, die wasserlösliche, wasserunlösliche, rußhaltige sowie aus Seesalz und Mineralstaub bestehende Aerosolpartikel getrennt erkennen. Dieser erlaubt den Transfer des Modellhintergrunds aus dem Raum der chemischen Massenkonzentrationen in den Raum der aerosoloptischen Dicke, in dem anschließend ein zweidimensionales, variationelles Assimilationsverfahren angewandt wird. Es konnte für den Zeitraum Juli – November 2003 jeweils für die wasserlöslichen, die rußhaltigen und die mineralstaubhaltigen Komponenten separat eine Reduktion der mittleren Abweichung und dadurch des RMSE in den Analysefeldern nachgewiesen werden. Außerdem konnte die verbesserte Modellierung von Waldbrand- und Sandsturm-Episoden exemplarisch gezeigt werden.

Aerosol, aerosol type, chemical transport model, data assimilation, variational assimilation

(Published in German)

Marion SCHROEDTER-HOMSCHEIDT

Deutsches Fernerkundungsdatenzentrum des DLR, Oberpfaffenhofen

Observation operator for the assimilation of aerosol type resolving satellite measurements into a chemical transport model

Doctoral Thesis Universität zu Köln

DLR-Forschungsbericht 2009-16, 2009, 94 pages, 53 figs., 14 tabs., 165 refs., 29.00 €

Using data assimilation methods, numerical weather prediction accuracy could be improved significantly in the last two decades. On the contrary, chemical weather modelling especially of aerosol particles with chemical transport models is still based mainly on static emission databases which cannot treat episodic emissions satisfactorily. An observation operator for a component wise assimilation of satellite measurements is developed to couple chemical mass concentration modelling with satellite-based measurements. It treats water soluble, water insoluble, soot, sea salt and mineral dust aerosol components separately. A two-dimensional, variational assimilation method is then applied on the basis of component wise aerosol optical depth. Separately, for the water soluble, the soot and the mineral dust aerosol components a bias reduction and therefore a root mean square error reduction is observed in the analysis fields for a test period from July to November 2003. Additionally, examples of an improved analysis field in wildfire and dust outbreak situations could be shown.

Forschungsbericht 2009-16

Beobachtungsoperator zur Assimilation satellitenbasierter Messungen verschiedener Aerosol- typen in ein Chemie-Transportmodell

Marion Schroedter-Homscheidt

Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt
Deutsches Fernerkundungsdatenzentrum
Oberpfaffenhofen

94 Seiten
53 Bilder
14 Tabellen
165 Literaturstellen



DLR

**Deutsches Zentrum
für Luft- und Raumfahrt e.V.**

in der Helmholtz-Gemeinschaft

**Beobachtungsoperator zur Assimilation satelliten-
basierter Messungen verschiedener Aerosoltypen
in ein Chemie-Transportmodell**

Inaugural-Dissertation

zur

Erlangung des Doktorgrades

der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der

Universität zu Köln

vorgelegt von

Marion Schroedter-Homscheidt

aus Bonn

Köln

2009

Berichtersteller:

Priv.-Doz. Dr. H. Elbern

Prof. Dr. M. Kerschgens

Tag der letzten mündlichen Prüfung : 24. April 2009

Zusammenfassung

In der numerischen Wettervorhersage konnte in den vergangenen Jahren durch die Datenassimilation von Satellitenbeobachtungen eine erhebliche Verbesserung der Prognosegenauigkeit erzielt werden. Bei der Vorhersage chemischer Substanzen und insbesondere der Aerosolpartikel mit Hilfe von Chemie-Transport-Modellen herrscht derzeit die numerische Modellierung basierend auf statischen Emissionskatastern vor. Einzelne episodische Ereignisse können damit nicht modelliert werden. Um dies zu überwinden, muß eine Kopplung der chemischen Modellierung von Massenkonzentrationen einzelner Substanzklassen und der auf physikalisch-optischen Prinzipien beruhenden Messung der Satelliten erfolgen. Im Speziellen beschäftigt sich diese Arbeit mit einem Beobachtungsoperator für die getrennte, komponentenweise Assimilation von Satellitenbeobachtungen der wasserlöslichen, wasserunlöslichen, rußhaltigen sowie aus Seesalz und Mineralstaub bestehenden Aerosolpartikel in der bodennahen Grenzschicht. Dafür ist zunächst eine Abbildung von den in der Beobachtung verwendeten Aerosolkomponenten auf die Aerosoltypen des Modells im Hinblick auf ihre physikalisch-optischen und chemischen Eigenschaften nötig. Gleichzeitig werden verschiedene Größenverteilungen in Modell und Beobachtung berücksichtigt. Dies erlaubt den Transfer des Modellhintergrunds aus dem Raum der chemischen Massenkonzentrationen in den Raum der aerosoloptischen Dicke, in dem anschließend ein zweidimensionales, variationelles Assimilationsverfahren angewandt wird. Für die Bestimmung von Hintergrund- und Beobachtungsfehlerkovarianzen wurde eine Validierung mit Hilfe des Bodenmessnetzwerks AERONET durchgeführt. Die Qualität der Analysefelder wurde durch Validierungen der aerosoloptischen Dicke mit AERONET-Bodenmessungen insbesondere in Situationen mit Sandsturmsausbrüchen aus der Sahara, durch Vergleiche mit Messungen des englischen 'Black Smoke and Sulphur Dioxide Networks' für rußhaltige Partikel und durch den Vergleich mit Messungen der wasserlöslichen Aerosolkomponenten SO_4 , NH_4 und NO_3 im Rahmen von EMEP (Co-operative Programme for Monitoring and Evaluation of the Long-range Transmission of Air pollutants in Europe) untersucht. Es konnte für den Zeitraum der ASSET-Kampagne vom Juli – November 2003 jeweils für die wasserlöslichen, die rußhaltigen und die mineralstaubhaltigen Komponenten separat eine Reduktion der mittleren Abweichung und dadurch des RMSE in den Analysefeldern nachgewiesen werden. Außerdem konnte die verbesserte Modellierung von Waldbrand- und Sandsturm-Episoden exemplarisch gezeigt werden.

Abstract

Using data assimilation methods, numerical weather prediction's accuracy could be improved significantly in the last two decades. On the contrary, chemical weather modelling especially of aerosol particles with chemical transport models is still based mainly on static emission databases while episodic emissions can not be treated sufficiently. In order to overcome this situation, a coupling of chemical mass concentration modelling and satellite-based measurements relying on physical and optical principles has to be developed. Specifically, this study deals with the observation operator for a component wise assimilation of satellite measurements. It treats water soluble, water insoluble, soot, sea salt and mineral dust containing aerosol particles in the atmospheric boundary layer separately. This approach includes first a mapping of aerosol classes used both in observation and model space taking their optical and chemical properties into account. Together with a treatment of different size distributions in observations and model state, this allows for transforming the model background from the chemical mass concentration space into the aerosol optical depth space. A two-dimensional, variational assimilation method is applied on the basis of component wise aerosol optical depth. Error covariance matrices are defined based on a validation against AERONET sun photometer ground measurements. The quality of analysis fields is assessed through validations against AERONET for aerosol optical depth especially in Saharan dust outbreak situations, through comparisons against the British Black Smoke and Sulphur Dioxide Network for soot-containing particles and through comparisons with measurements of the water soluble components SO_4 , NH_4 , and NO_3 conducted by the EMEP (Co-operative Programme for Monitoring and Evaluation of the Long-range Transmission of Air pollutants in Europe) network. Separately, for the water soluble, the soot and the mineral dust aerosol components a bias reduction and therefore a root mean square error reduction is observed in the analysis fields for a test period from July to November 2003. Additionally, examples of an improved analysis field in wildfire and dust outbreak situations could be shown.

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis	vii
Abbildungsverzeichnis	ix
Tabellenverzeichnis	xi
Akronyme	xii
Formelzeichen	xiv
1 Einführung	1
1.1 Stand des Wissens	2
1.2 Zielsetzung	3
2 Grundlagen	5
2.1 Aerosole in der Grenzschicht	5
2.2 Aerosolmessungen mit Hilfe von Satelliten	7
2.3 SYNAER – Bestimmung von Aerosolkomponenten	10
2.4 Das Modellsystem EURAD	14
2.5 Variationelle Datenassimilation	17
3 Der H-Operator und seine Sensitivitäten	21
3.1 Konzept zur Assimilation von SYNAER Aerosolmessungen	21
3.2 Vergleichbarkeit von SYNAER- und EURAD-Aerosoltypen	23
3.3 Bestimmung der Extinktionseffizienz im EURAD-Modell	31
3.4 SYNAER-äquivalente Größenverteilung in EURAD	33
3.5 Optische Eigenschaften der EURAD-Aerosolklassen	35
3.6 Bestimmung der aerosoloptischen Dicke im EURAD-Modell	40
3.7 Der adjungierte H-Operator	40
4 Die zweidimensionale variationelle Assimilation	41
4.1 Referenzmessungen verschiedener Bodenstationsnetzwerke	41
4.2 Testdatensätze	43
4.3 Validierung der Beobachtungen	43
4.4 Qualitätskontrolle der SYNAER-Beobachtungen	46
4.5 Validierung des Hintergrundfelds	49
4.6 Vergleich von Beobachtungen und Hintergrundfeld	54
4.7 Realisierung der 2D-Var-Methode	56
4.8 Statistik der Analyseinkremente	57
5 Fehleranalyse und Validierung des Analysefelds	63
5.1 Fehleranalyse	63
5.2 Validierung der aerosoloptischen Dicke	67
5.3 Vergleich mit dem UK Smoke and Sulphur Dioxide Network	69
5.4 Vergleich mit dem EMEP-Netzwerk	70
6 Fallbeispiele	72
6.1 Fallbeispiel 15. August 1997	72
6.2 Fallbeispiel 5. und 25. August 1997	80
6.3 Staubaussbrüche in Europa	88
7 Zusammenfassung und Diskussion	89
A Detailergebnisse	I
B Satelliten-basierte Retrievalmethoden	V
C Brechungsindex organischer Substanzen	IX
D Literatur	XXI

Abbildungsverzeichnis

Abb. 1: Einfluß der Atmosphäre auf das Satellitensignal	9
Abb. 2: Schematische Übersicht des ERS-2-SYNAER-Verfahrens	13
Abb. 3: Das Zusammenspiel der Kostenfunktionen J_b und J_o	20
Abb. 4: Schematische Darstellung des Assimilationskonzepts	23
Abb. 5: Messungen des Realteils des komplexen Brechungsindex für Ruß	24
Abb. 6: Messungen des Imaginärteils des komplexen Brechungsindex für Ruß	25
Abb. 7: Imaginärteil des Brechungsindex für mineralische Aerosolpartikel	26
Abb. 8: In OPAC beschriebene Größenverteilungen der Aerosolkomponenten	34
Abb. 9: Sensitivität des Extinktionskoeffizienten bzgl. des Modendurchmessers	35
Abb. 10: $\beta_{\text{ext},550\text{nm}}$ als Funktion des Realteils des Brechungsindex	36
Abb. 11: $\beta_{\text{ext},550\text{nm}}$ als Funktion des Imaginärteils des Brechungsindex	36
Abb. 12: Realteil des Brechungsindex für organische Substanzen	38
Abb. 13: Vergleich der $\text{AOD}_{\text{SYNAER,ERS-2}}$ bei 550 nm mit Bodenmessungen des AERONET- Netzwerks	44
Abb. 14: Vergleich der $\text{AOD}_{\text{SYNAER}}$ der ENVISAT-SYNAER V1.8 Messung mit AERONET für 119 europäische Vergleichspaare in 2003	45
Abb. 15: Europäische Karte aller AERONET-Stationen	46
Abb. 16: $\text{AOD}_{\text{SYNAER-AERONET}}$ als Funktion retrievalinterner Parameter	48
Abb. 17: Vergleich der $\text{AOD}_{\text{SYNAER}}$ der ENVISAT V1.8 Messung nach der automatischen Qualitätskontrolle mit AERONET für 105 Vergleichspaare in Europa und Afrika in 2003	49
Abb. 18: Zweidimensionales Histogramm der $\text{AOD}_{\text{EURAD}}$ vs. $\text{AOD}_{\text{AERONET}}$	49
Abb. 19: Monatsweises 2D-Histogramm der $\text{AOD}_{\text{EURAD}}$ vs $\text{AOD}_{\text{AERONET}}$	51
Abb. 20: Europäische Karte der EURAD-Validierungsergebnisse für jede AERONET- Station	52
Abb. 21: Europäische Validierungskarte für jede AERONET-Station nach Monaten getrennt	53
Abb. 22: Zweidimensionale AOD-Histogramme von EURAD vs ENVISAT-SYNAER V1.8	54
Abb. 23: $\text{AOD}_{\text{EURAD/SYNAER}}$ als Funktion der $\text{AOD}_{\text{SYNAER}}$ für INSO (links) und SOOT (rechts)	55
Abb. 24: Histogramme der OmF_{WASO} (Punkte) und der OmA_{WASO} (Linie) für den gesamten ASSET-Zeitraum	57
Abb. 25: Histogramme der OmF (Punkte) und der OmA (Linie) für die INSO-Komponente (oben) und die SOOT-Komponente (unten) jeweils für den gesamten ASSET- Zeitraum	58
Abb. 26: Europakarte der für jede EURAD-Gitterzelle und für den ASSET-Zeitraum gemittelten OmF der $\text{AOD}_{\text{Gesamt}}$ (links), der gemittelten OmA (Mitte) und der Anzahl der genutzten Werte pro Gitterzelle (rechts)	59
Abb. 27: Europakarte der für jede EURAD-Gitterzelle und für Juli (oben), August (Mitte) und September 2003 (unten) gemittelten OmF_{WASO} (links) und der Anzahl der Werte pro Gitterzelle (rechts)	60
Abb. 28: Europakarte der für jede Gitterzelle und für Oktober (oben) und November 2003 (unten) gemittelten OmF_{WASO} (links) und der Anzahl der Werte pro Gitterzelle (rechts)	61

Abb. 29: Europakarte der für jede EURAD-Gitterzelle und August 2003 (rechts) gemittelten OmF_{SOOT} (links), der gemittelten OmA_{SOOT} (Mitte) und der Anzahl der genutzten Werte pro Gitterzelle (rechts).....	62
Abb. 30: Farbkomposit des NOAA-AVHRR-Instruments am 14. August 2003 zur Überflugszeit um 14:29 UTC. Verbrannte Flächen sind an ihrer dunklen Färbung in der Mitte und im Süden Portugals zu erkennen.....	62
Abb. 31: Histogramm von Differenzen ($AOD_{ohne\ N-Umrechnung} - AOD_{mit\ N-Umrechnung}$)	64
Abb. 32: Prozentualer Anteil der Produkte der Alkane und Alkene an der $AOD_{EURAD,550nm}$	65
Abb. 33: Prozentualer Anteil der Produkte der Aromate, des Limonen und des α -Pinen an der $AOD_{EURAD,550nm}$	66
Abb. 34: Histogramm der $O_{TOTALmF}$ (Punkte), der $O_{TOTALmA}$ (Linie) und der O_{WISMA} (Striche) für den gesamten ASSET-Zeitraum.....	67
Abb. 35: Kumulative Verteilung der Differenz $O_{TOTAL} - O_{WSI}$	67
Abb. 36: Vergleich von $AOD_{x_b-AERONET}$ (a) und $AOD_{x_a-AERONET}$ (b)	68
Abb. 37: Histogramm der Differenzen BC_{x_b-UKBC} und BC_{x_a-UKBC}	69
Abb. 38: Histogramm der Differenzen $(N+S)_{x_b-EMEP}$ und $(N+S)_{x_a-EMEP}$	71
Abb. 39: PM2.5 und PM10 des EURAD-Modells für 10 UTC am 15.8.1997 (Quelle: EURAD).....	72
Abb. 40: Massenkonzentration verschiedener EURAD Aerosolklassen (Quelle: EURAD).	74
Abb. 41: AOD_{SYNAER} bei 550 nm gemessen vom ERS-2 am 15.8.1997	75
Abb. 42: Assimilationsbeispiel für die Komponente WASO	76
Abb. 43: Assimilationsbeispiel für die Komponente INSO	77
Abb. 44: Assimilationsbeispiel für die Komponente SOOT.....	78
Abb. 45: Räumliche Verteilungen der analysierten Massenkonzentrationen	79
Abb. 46: Farbkomposite des NOAA-14-AVHRR am 5.8.1997 um 12:08 UTC (rechts) und 13:50 UTC (links)	81
Abb. 47: Farbkomposit des NOAA-14-AVHRR am 25.8.1997 um 11:50 UTC (rechts) und 13:31 UTC (links)	81
Abb. 48: Vergleich von Modellhintergrund und Beobachtungen	82
Abb. 49: $AOD_{x_b,i}$ in den Vertikalschichten der Zelle (19,15) für den 5.8.1997	83
Abb. 50: Analysefelder des ECMWF-Modells am 25.8.1997	85
Abb. 51: Analysefelder des ECMWF-Modells am 5.8.1997	87
Abb. 52: Hintergrund- bzw. Analysefeld versus AERONET AOD-Messung für Staubfälle	88
Abb. 53: Europakarte der für jede EURAD-Gitterzelle und für den ASSET-Zeitraum gemittelten OmF (links), der gemittelten OmA (Mitte) und der Anzahl der genutzten Werte pro Gitterzelle (rechts) für die Aerosolkomponenten WASO (oben), INSO (Mitte) und SOOT (unten).....	III

Tabellenverzeichnis

Tab. 1: Anteile der Basiskomponenten an den SYNAER-Aerosolmischungen.....	11
Tab. 2: Eigenschaften der erweiterten SYNAER-Aerosolkomponenten	27
Tab. 3: Übersicht der in den EURAD-MADE behandelten Aerosolklassen.....	27
Tab. 4: Übersicht der in den EURAD-SORGAM behandelten Aerosolklassen	28
Tab. 5: Abbildung von EURAD-Klassen auf SYNAER-Komponenten.....	31
Tab. 6: Komplexer Brechungsindex für alle EURAD-Aerosolklassen.....	39
Tab. 7: Monatliche Validierungsergebnisse für $AOD_{EURAD-AERONET}$ um 10 UTC	50
Tab. 8: Beitrag einzelner Modellschichten i zur AOD_{x_b} bei 550 nm.....	84
Tab. 9: Im Vergleich mit ENVISAT-SYNAER V1.9 genutzte AERONET-Bodenstationen .I	
Tab. 10: Übersicht über die im Vergleich mit EURAD genutzten AERONET- Bodenstationen	II
Tab. 11: Übersicht Satellitenplattformen und Retrievalmethoden	V
Tab. 12: Übersicht verschiedener Sensoren und ihrer raum-zeitlichen Auflösung.....	VI
Tab. 13: Übersicht über Stärken und Schwächen der einzelnen Verfahren	VII
Tab. 14: Übersicht zum Brechungsindex organischer Substanzen	XX

Akronyme

AATSR	Advanced Along Track Scanning Radiometer
ADEOS	Advanced Earth Observation Satellite
AERONET	Aerosol Robotic Network
AOD	aerosloptische Dicke
AOD550	aerosloptische Dicke bei 550 nm
AOT	aerosloptische Tiefe
AQUA	Satellit der EOS-Serie
ASSET	Assimilation of ENVISAT data
ATSR-2	Along Track Scanning Radiometer
AVHRR	Advanced Very High Resolution Radiometer
BC	Black Carbon
BDQA	Base de Données Qualité de l'Air
BISO	Biomasseverbrennungs-Ruß als Aerosolkomponente in SYNAER
BLUE	Best Linar Unbiased Estimator
CALIOP	Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization
CAMx	Comprehensive Air quality Mode
CHIMERE	französisches Luftqualitäts-Community-Modell
COST	Europ. Cooperation in Scientific and Technical Research
CTM	Chemie-Transport-Modelle
CUACE	Chinese Unified Atmospheric Chemistry Environment
DISO	Dieselfuß als Aerosolkomponente in SYNAER
EC	Elemental Carbon
ECMWF	Europäisches Zentrum für Mittelfristwettervorhersage
EEM	EURAD Emissions-Modell
EMEP	European Monitoring and Evaluation Programme
ENVISAT	Europäischer Umweltsatellit
EOS	Earth Observation System
ERS-2	European Remote Sensing Satellite
EUMETSAT	Europ. Organisation for the Exploitation of Meteorological Satellites
EURAD	European Air Pollution Dispersion Model
EXACT	Strahlungstransportmodell
FAO	Welternährungsprogramm der Vereinten Nationen
FC	Forecast
FY-2C	Fengyun-2C
GOCART	Goddard Global Ozone Chemistry Aerosol and Transport Model
GOES	Geostationary Operational Environmental Satellite
GOME	Global Ozone Monitoring Instrument
HNMR	High resolution nuclear magnetic resonance spectroscopy
IEA	Internationale Energieagentur
INDOEX	Indian Ocean Experiment
INSL	wasserunlösliche und gering absorbierende SYNAER-Komponente
INSO	wasserunlösliche Aerosolkomponente in SYNAER
KNMI	Königlich-Niederländisches Meteorologisches Institut
L-BGFS	Limited memory Broyden-Fletcher-Goldfarb-Shanno Methode
LMDz-INCA	CTM du LMD, Interactive Chemistry and Aerosols
LOTOS	Long Term Ozone Simulation Modell

MADE	Modales Aerosoldynamikmodell für Europa
MATCH	Model of Atmospheric Transport and Chemistry
MERIS	Medium Resolution Imaging Spectrometer
METOP	Meteorological Operational Polar Satellites
MIEM	Mie-Modell München
MILO	gering absorbierender Mineralstaub als SYNAER-Komponente
MISR	Multi-Angle Imaging Spectroradiometer
MITR	Mineralstaub als Aerosolkomponente in SYNAER
MM5	meteorologisches Mesoscalen-Modell
MODIS	Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer
NASA	National Aeronautics and Space Administration
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration
OBS	Observation
OC	organic carbon
OFIS	Ozone Fine Structure model
OI	Optimum Interpolation
OmA	Observation Minus Analysis difference
OmF	Observation Minus Forecast difference
OPAC	Optical Properties of Aerosols and Clouds
POLDER	Polarising Colour Sensor
POLYPHEMUS	air quality modeling system (INRIA, ISRN, Univ. Paris-Est)
PM2.5	Massenkonzentration von Partikeln mit einem Durchmesser < 2.5 µm
PM10	Massenkonzentration von Partikeln mit einem Durchmesser < 10 µm
PRIDE	Puerto Rico Dust Experiment
RACM	Regional Atmosphere Chemistry Mechanism
RADM2	Regional Acid Deposition Model
RAMS	Regional Atmospheric Modelling System
REM-CALGRID	photochemisches Transportmodell der FU Berlin (Met. Institut)
RMSE	Root Mean Square Error
SSAM	Seesalz-Aerosolkomponente in SYNAER, Akkumulationsmode
SSCM	Seesalz-Aerosolkomponente in SYAER, Grobmode
SCIAMACHY	Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Cartography
SORGAM	Sekundäres Organisches Modul
SOS	Sucessive Orders of Scattering
SOOT	OPAC Rußkomponente
SYNAER	Synergetic Aerosol Retrieval
SZA	Sonnenzenitwinkel
TERRA	Satellit der EOS-Serie
TNO	Nederlandse Organisatie voor toegepast-natuurwetenschappelijk onderzoek
TOMS	Total Ozone Monitoring System
TM3	Chemical Tracer Model of KNMI
UKBC	United Kingdom Black Carbon and Sulfur Monitoring Network
UTC	Universal Time Coordinated
UV	ultravioletter Strahlungsbereich
VH2OAJ	Massenkonzentration des Wassers im Aerosolpartikel
WASO	wasserlösliche Aerosolkomponente in SYNAER

Formelzeichen

A	Querschnittsfläche eines Partikels
α	Parameter der schnellen Mie-Parametrisierung
\mathbf{B}	Fehlerkovarianzmatrix des Hintergrundfeldes
β_{ext}	Extinktionskoeffizient
C_{ext}	Extinktionsquerschnitt
γ	Parameter der schnellen Mie-Parametrisierung
D	Partikeldurchmesser
D_m	Mediandurchmesser einer Log-Normal-Größenverteilung
$\Delta \mathbf{x}_a$	Analyseinkrement
δ	optische Dicke
E	Emissionsstärke
E_m	Fehler durch Mehrdeutigkeit in SYNAER
E_f	Fitfehler in SYNAER
E_s	systematischer Fehler, Bias
F	Strahlungsflußdichte
F_0	extra-terrestrische Strahlungsflußdichte
f_i	Anteil einer Aerosolkomponente an der AOD einer Aerosolmischung
g_i	Verhältnis der AOD von Analyse- und Hintergrundfeld
\mathbf{H}	Beobachtungsoperator
J	Kostenfunktion
\mathbf{K}	Kalman gain matrix
k	Imaginärteil des komplexen Brechungsindex
λ	Wellenlänge
L	Anzahl von Validierungskoinzidenzen
M_l	integrale Momente einer Größenverteilung
m	komplexer Brechungsindex
m_i	Brechungsindex der i-ten Modellklasse
mk_i	Massenkonzentration der i-ten Modellklasse
μ	Parameter der schnellen Mie-Parametrisierung
N	Gesamtpartikelanzahl einer Größenverteilung
n	Realteil des komplexen Brechungsindex
Q_{ext}	Extinktionseffizienz
Q_r	Rayleigh-Approximation von Q_{ext}
Q_v	Van-de-Hulst Approximation von Q_{ext}
\mathbf{R}	Fehlerkovarianzmatrix der Beobachtungen
R	Reflektanz
R_m	Modenradius einer Log-Normal-Größenverteilung
r	Partikelradius
σ	Standardabweichung beliebiger Differenzen
σ_m	geometrische Standardabweichung einer Log-Normal-Größenverteilung
T	Parameter der schnellen Mie-Parametrisierung
ω	Reihenentwicklungsparameter von Q_v
x	Größenparameter
\mathbf{x}_a	Analyse
\mathbf{x}_b	Modellhintergrund
\mathbf{y}_0	Beobachtungsvektor
z	Höhe über dem Boden

1 Einführung

Motiviert durch die Wirkung des atmosphärischen Aerosols auf die menschliche Gesundheit als Feinstaub und als ein den Strahlungshaushalt der Erde verändernder Parameter mit hoher Relevanz in der Klimaforschung werden Aerosole in regionalen Chemie-Transport-Modellen (CTM) zunehmend berücksichtigt. Während die Simulation von chemischen und physikalischen Prozessen in den letzten Jahren große Fortschritte gemacht hat, basiert die Beschreibung von Quellen des Aerosols weiterhin auf Emissionskatastern, die sowohl in Aktualität, Auflösung als auch in der Qualität teilweise unzureichend sind (Memmesheimer et al., 2004). Gerade für die Erfassung kurzfristiger Ereignisse wie z.B. Brände oder Sandstürme oder variabler Quellen wie z.B. den Verkehr oder die Vegetation ist die Modellierung auf die Nutzung zeitnaher Messungen des Aerosols angewiesen. Bodenmessungen können erste Informationen liefern, sind jedoch in der räumlichen Abdeckung oft auf eine im Vergleich zur räumlichen Variabilität von Aerosolen unzureichende Anzahl von Bodenstationen beschränkt.

Flächendeckende Messungen auf regionaler bzw. globaler Skala können dagegen in Zukunft mit Satelliten gewonnen werden. Allerdings messen Satelliteninstrumente nur die optischen Eigenschaften von Aerosolen. Erste Arbeiten zur routinemäßigen Nutzung von satellitenbasierten Messungen der aerosoloptischen Dicke mit einem Luftqualitätsprognosemodell veröffentlichten z.B. Hutchinson et al. (2004). Die Autoren betonen, dass sie derzeit eine Prognose von Luftqualitätstrends nur qualitativ aufgrund von Trajektorienanalysen vornehmen, da der Übergang von satellitenbasierten Beobachtungen der aerosoloptischen Dicke auf die in Modellen verwendete chemische Beschreibung anhand von Massenkonzentrationen verschiedener Aerosolklassen noch nicht gelöst sei.

Zur Lösung dieses Problems eignet sich die Datenassimilation. Sie ermöglicht die statistische Abschätzung des Atmosphärenstatus auf der Basis von unregelmäßig in Raum und Zeit verteilten Beobachtungen und dem bisherigen Modellzustand. Dabei werden vorhandene Informationen über die Fehlercharakteristik von Modell und Beobachtungen berücksichtigt. Das Ziel ist die konsistente Verbindung von Beobachtungen und Modell auch in Fällen, in denen die Beobachtungen und das Modell wie in diesem Fall strukturelle Unterschiede aufweisen. Mit Hilfe eines Beobachtungsoperators können die physikalisch-optischen Eigenschaften der Aerosolmessung und die modellierten chemischen Eigenschaften des Aerosols verknüpft werden.

1.1 Stand des Wissens

Datenassimilationsverfahren wurden zuerst in der numerischen Wettervorhersage entwickelt und eingesetzt (Daley, 1991; Lorenc, 1986). Sie setzten sich in den 90er Jahren zunehmend auch in immer breiteren Anwendungsfeldern z.B. in der Ozeanographie (Ghil, 1989), der Hydrologie und der Chemie-Transport-Modellierung durch (Elbern et al., 1997, 1999, 2000, 2001, 2007; Khattatov et al., 1999; Levelt et al., 1998; Lamarque et al., 1999; van Loon et al., 2000). Während diese Arbeiten die Assimilation gasförmiger Substanzen wie das Ozon (Lahoz et al., 2007; Errera et al., 2008), die NO_2 -Konzentration oder Kohlenmonoxid (z.B. Arellano et al., 2007) behandeln, gibt es auch erste Ergebnisse zur Assimilation von satellitenbasierten Beobachtungen des Grenzschicht-Aerosols in Chemie-Transportmodelle.

Collins et al. (2001) nutzen im Rahmen einer Fallstudie innerhalb des Indian Ocean Experiments (INDOEX) in einem Verfahren der Optimalen Interpolation (Lorenc, 1986) Messungen der aerosoloptischen Dicke des NOAA-AVHRR (Advanced Very High Resolution Radiometer) über dem Indischen Ozean. Mit Hilfe dieses Ansatzes wurde die Verteilung des maritimen Aerosols während der INDOEX-Kampagne untersucht (Rasch, 2001). Für die AVHRR-Messungen werden feste, ozeantypische optische Eigenschaften des Aerosols angenommen; eine Typanalyse oder auch die Bestimmung von Aerosolen über Landoberflächen kann dagegen nicht durchgeführt werden. Das von Collins et al. eingesetzte Modell „Model of Atmospheric Transport and Chemistry“ (MATCH, Rasch et al., 1997) wird in dieser Studie zur Diagnose von Seesalzaerosolen und der Prognose von Sulfat-, Staub- und Rußaerosolen verwendet. Obwohl das Modell MATCH intern zwischen diesen verschiedenen Aerosolklassen unterscheidet, muss infolge der fehlenden Aerosoltypinformation in den NOAA-AVHRR-Messungen die Verteilung der verschiedenen Aerosolklassen im Modell während der Assimilation konstant gehalten werden.

Das gleiche Verfahren wurde von Yu et al. (2003) für die Assimilation von aerosoloptischen Dicken des Moderate Resolution Imaging Spektorradiometer (MODIS) in das Goddard Global Ozone Chemistry Aerosol and Transport (GOCART) Modell verwendet. Ziel von Yu et al. (2003) war dabei die Erzeugung eines konsistenten, globalen Aerosoljahresgangs für den Zeitraum November 2000 – Oktober 2001.

Verver et al. (2002) und van Velthoven et al. (2004) beschreiben einen am Königlich-Niederländischen Meteorologischen Institut (KNMI) für das Modell TM3 (Chemical Tracer Model of KNMI) entwickelten Ansatz für die Assimilation aerosoloptischer Dicken des Along Track Scanning Radiometer (ATSR-2), der dem von Collins et al. (2001) in den Grundzügen gleicht und bisher für einzelne Fallbeispiele eingesetzt wurde. Auch bei den ATSR-2 Messungen wird ein konstanter Aerosoltyp angenommen.

Van Loon et al. (2001) und van Velthoven et al. (2004) dagegen nutzen einen Ensemble-Kalman-Filter (Evensen, 1997) für Assimilationsfallstudien der aerosoloptischen Dicken aus ATSR-2 in das LOTOS (Long Term Ozone Simulation) Modell. Dieses Verfahren wurde ursprünglich für die Assimilation von täglichen Aerosol- und Ozonmessungen des europäischen EMEP-Bodenstationsnetzwerkes (Co-operative Programme for Monitoring and Evaluation of the Long-range Transmission of Air Pollutants in Europe) entwickelt.

Während diese Studien keine aerosoltyp-auflösende Assimilation durchführen, konzentrieren sich Wang et al. (2004a und b) auf die Assimilation der aerosoloptischen Dicke von Staubaerosolen, die selektiv mit den Geostationary Operational Environmental Satellites (GOES-8, Wang et al., 2003) über dem Atlantischen Ozean beobachtet werden können. Für das Puerto Rico Dust Experiment (PRIDE) im Juli 2000 wurden GOES-8 Messungen in das

Regional Atmospheric Modelling System (RAMS) mit einem „Nudging“-Verfahrens assimiliert. Niu et al. (2007) benutzen dagegen einen variationellen Ansatz, um einen aus dem geostationären FY-2C-Satelliten abgeleiteten Staubindex in das Chinese Unified Atmospheric Chemistry Environment – Dust (CUACE/Dust) Prognosesystem zu assimilieren.

In einer Fallstudie im Mai 2007 nutzen Hara et al. (2008) Messungen des Cloud-Aerosol-Lidar with Orthogonal Polarization (CALIOP), einem Rückstreu-Lidarmessgerät an Bord des CALIPSO-Satelliten, zusammen mit bodengestützten Lidarmessungen zur dreidimensionalen Quantifizierung von Staubaussbrüchen über China und Japan und zur Assimilation von Staubaerosolen in das RAMS/CFORS-3DVAR-Staub-Transport-Modell.

Generoso et al. (2007) assimilieren in das LMDz-INCA-Modell mit ‚fine‘ und ‚coarse mode‘ Messungen der aerosoloptischen Dicke von POLDER erstmals nach Größenklassen aufgeteilte Aerosolmessungen. Ihr Fokus liegt dabei auf dem arktischen Aerosol.

Mittlerweile werden erste Ansätze verfolgt, um zwischen den in der Natur dominierenden Aerosolkomponenten Ruß, Staub, wasserlöslichen Partikeln oder Meersalz in einer einzigen Satellitenmessung zu unterscheiden (z.B. Verfahren SYNAER, Holzer-Popp et al., 2002a und 2002b). Damit ergibt sich die Möglichkeit der Assimilation einzelner Aerosolkomponenten.

1.2 Zielsetzung

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, mit Hilfe eines Beobachtungsoperators das Problem der Kopplung von gemessenen optischen Aerosoleigenschaften mit den im Modell genutzten chemischen Eigenschaften zu lösen. Das wesentliche neue Element hierbei ist, dass verschiedene in der atmosphärischen Grenzschicht vorhandenen Aerosoltypen getrennt behandelt werden. Damit werden die Grundlagen für ein operationelles System zur variationellen Assimilation von über Land und Ozeanen vorliegenden SYNAER-Messungen des ‚European Remote Sensing‘ Satelliten ERS-2 bzw. des europäischen Umweltsatelliten ENVISAT in das Chemie-Transport-Modell EURAD geschaffen.

Hierzu ist zunächst die Analyse der Vergleichbarkeit der in Messung und Modell verwendeten Aerosolbeschreibung nötig. Die optische Dicke der teilweise chemisch bisher nicht näher spezifizierten Aerosolklassen des Hintergrundfelds kann mit Hilfe einer schnellen Parametrisierung der Mie-Theorie und einer Brechungsindex-Datenbank bestimmt werden. Für den späteren Einsatz in einem operationellen Prognosesystem muss der Beobachtungsoperator neben einer hohen numerischen Effizienz eine ausreichende Komplexität zur Sicherstellung der benötigten Genauigkeit aufweisen. Daher werden die Sensitivität des Beobachtungsoperators bzgl. der verwendeten Brechungsindexdatenbank und der im Modell vorliegenden Größenverteilung als maßgebliche Parameter untersucht. Für die Realisierung der variationellen Datenassimilation auf der Basis dieses Beobachtungsoperators in ersten Fallsbeispielen und Episoden muss anschließend ein erster Ansatz für die Fehlerkovarianzmatrizen gefunden werden.

Kapitel 2 enthält Grundlagen zu Aerosolen in der Grenzschicht, beschreibt die Möglichkeiten der Aerosolmessung mit Hilfe von Satelliten und im Besonderen das Verfahren SYNAER, fasst die Strukturen des Modellsystems EURAD zusammen und stellt die variationelle Datenassimilation vor. Kapitel 3 beschreibt das Konzept der Assimilation von SYNAER-Aerosolbeobachtungen in das EURAD System und behandelt im Detail den Beobachtungsoperator. Das Assimilationsverfahren, seine Implementierung und die Validierung von Beobachtungen und Hintergrundfeld mit Bodenmessungen der aerosoloptischen Dicke werden in Kapitel 4 beschrieben. Dabei wird insbesondere auch ein erster Ansatz für die

4 Einführung

Fehlerkovarianz von Beobachtung und Modellhintergrund erstellt. Vergleiche des Analysefelds mit Bodenmessungen sowohl der aerosoloptischen Dicken als auch der Massenkonzentrationen chemischer Substanzklassen und eine Fehleranalyse sind in Kapitel 5 darstellt. Dabei wird insbesondere auf den Fehler in der gesamt-aerosoloptischen Dicke durch das Fehlen von mineralischem und Seesalzaerosol in der verwendeten EURAD-Version und die Bedeutung der einzelnen Aerosolklassen im Modell für die aerosoloptische Dicke eingegangen. Das gesamte Assimilationssystem wird anschließend anhand einiger Fallbeispiele analysiert (Kapitel 6). Im abschließenden Kapitel 7 werden die Ergebnisse dieser Arbeit diskutiert, zusammenfassend dargestellt und bewertet.

2 Grundlagen

2.1 Aerosole in der Grenzschicht

Physikalisch – chemische Eigenschaften

Feste und flüssige Partikel mit einem Partikeldurchmesser von einigen 10 nm bis hin zu 10 μm im Trägergas Luft werden in der Atmosphäre als Aerosole bezeichnet. Typische Partikel in der Grenzschicht bestehen aus anorganischen Säuren, Staub, auskristallisiertem Seesalz, verschiedenen organischen Substanzen aus biogenen Emissionen und Ruß aus der Biomasseverbrennung. Neben diesen natürlich vorkommenden Aerosolpartikeln entstehen Partikel als Folge von Erosion und Tierhaltung und es werden anthropogene Rußpartikel insbesondere aus Industrie, Hausbrand und Verkehr emittiert. Primäre Aerosolpartikel werden direkt in die Atmosphäre emittiert. Bei sekundären Partikeln dagegen existieren Vorläufersubstanzen in der Gasphase, die erst infolge chemischer Umwandlungsprozesse in der Partikelphase kondensieren.

Im Rahmen dieser Arbeit soll zwischen Aerosoltypen, -komponenten, -klassen und -substanzen unterschieden werden. Der Begriff Aerosoltyp weist lediglich darauf hin, dass die Art des Aerosols ebenfalls Teil der beobachteten bzw. modellierten Variablen ist. Dagegen soll unter Aerosolkomponenten jeweils eine Gruppe von Aerosolbestandteilen verstanden werden, die in der Satellitenbeobachtung fest definiert ist. Aerosolklassen dagegen sind die im Chemie-Transport-Modell definierten Aerosolbestandteile, die sich aus verschiedenen chemischen Substanzen zusammensetzen.

Im Gegensatz zu Spurengasen, die alleine durch ihre Konzentration beschrieben werden, müssen Aerosole zusätzlich zur chemischen Zusammensetzung auch durch Partikelanzahl, Größenverteilung, Mischungszustand, Phase, Partikelform und den Brechungsindex charakterisiert werden. Zur Beschreibung der Größenverteilung unterscheiden z.B. Whitby und Sverdrup (1973) zwischen verschiedenen Moden:

- Nukleationsmode: Sehr kleine, durch Kondensation oder direkte Emission neu gebildete Partikel mit einem typischen Partikelradius von 10^{-2} μm . Durch Koagulation wachsen diese Partikel mit zunehmendem Alter an.
- Akkumulationsmode: Partikel mit einem typischen Radius zwischen 10^{-1} und 1 μm , die über weite Strecken transportiert werden können, sich akkumulieren und eine lange Lebensdauer von Tagen bis Wochen besitzen. Wichtigste Senke für Partikel des Akkumulationsmodes ist die nasse Deposition.

6 Grundlagen

- Grobpartikelmode: Durch direkte Emission freigesetzte Partikel mit einem Partikelradius vom mehr als 1 μm , die aufgrund ihrer Größe eine hohe Depositionsrate und damit eine kurze Lebensdauer aufweisen.

Größenverteilungen des Aerosols genügen häufig einer logarithmischen Normalverteilung als Funktion des Partikeldurchmessers D (z.B. Seinfeld und Pandis, 1998), die durch die Gesamtanzahlkonzentration N der Verteilung, dem Mediandurchmesser D_m und der geometrischen Standardabweichung σ_m parametrisiert werden:

$$\frac{dN}{d \ln D} = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \frac{N}{\ln \sigma_m} \exp \left[-\frac{\left(\ln \frac{D}{D_m} \right)^2}{2 (\ln \sigma_m)^2} \right] \quad (1)$$

Optische Eigenschaften

Die Strahlungsflußdichte F ist als der Fluß von Strahlungsenergie pro Zeit durch eine bestimmte Fläche definiert. Das Lambert-Beer'sche Gesetz beschreibt die durch Aerosole verursachte Extinktion der in die Erdatmosphäre einfallenden Strahlungsflußdichte F_0 . Die Länge des optischen Wegs geht hier als Höhe über dem Boden z ein, F ist die am Erdboden ankommende Strahlungsflußdichte und β_{ext} der Extinktionskoeffizient:

$$F = F_0 e^{-\beta_{ext} z} \quad (2)$$

Für ein einzelnes Partikel entspricht β_{ext} dem Extinktionsquerschnitt C_{ext} , der über die Querschnittsfläche A des Partikels definiert ist:

$$C_{ext} = Q_{ext} A \quad (3)$$

Die Extinktionseffizienz Q_{ext} selber kann als Effizienz eines einzelnen Partikels mit optisch aktivem Durchmesser D und komplexem Brechungsindex m interpretiert werden. Um Q_{ext} berechnen zu können, müssen die Maxwell'schen Gleichungen des elektromagnetischen Feldes im und um ein Partikel in Abhängigkeit vom umgebenden Medium gelöst werden. Eine umfangreiche Beschreibung findet sich in Bohren und Huffmann (1983). Die Streuung eines Partikels wird dabei durch den Realteil n des komplexen Brechungsindex m und der die Winkelabhängigkeit wiedergebenden Phasenfunktion beschrieben, während die Absorption durch den Imaginärteil des Brechungsindex k charakterisiert wird.

Für sphärische Partikel ergibt sich als Lösung die Mie-Theorie (Mie, 1908). Für mit der Wellenlänge des Lichts vergleichbar große bzw. größere Partikel muss die Mie-Theorie in vollem Umfang beachtet werden. Im solaren Spektralbereich von 200 – 1000 nm ist dies für Aerosolpartikel aller drei Größenverteilungsmoden der Fall.

Für nichtsphärische Aerosolpartikel dagegen gibt es keine allgemeingültige Lösung des Streuproblems. Ansätze in der Literatur behandeln jeweils einzelne geometrische Sonderformen wie z.B. plättchen-, säulen- oder ellipsoidförmige Partikel (Van de Hulst, 1957; Mishchenko et al., 1999; Rother und Schmidt, 1997). Da die Vielfalt der in der Atmosphäre vorkommenden Aerosolpartikel jedoch deutlich größer ist als die betrachtete Anzahl von Partikelformen, ist die Strahlungswirkung nicht-sphärischer Teilchen mit Hilfe dieser Untermenge vorhandener Partikelformen bisher nur eingeschränkt beschreibbar (Pilinis, 1995). Der in dieser Arbeit vorgestellte Ansatz zur operationellen Datenassimilation muss daher sphärische Partikel annehmen.

In atmosphärischen Untersuchungen existiert immer eine Vielzahl von Partikeln in verschiedenen Größenordnungen. Für die typische Dichte der Luft können einzelne Partikel als ausreichend weit voneinander entfernt angesehen werden und es gilt

$$\beta_{ext, Ensemble} = \sum_{i=1}^N \beta_{ext, i} \quad (4)$$

Für eine Verteilung verschieden großer Partikel kann β_{ext} als Integral von C_{ext} über der Anzahl der Partikel mit einem bestimmten D und dem Brechungsindex m dargestellt werden:

$$\beta_{ext} = \int_{-\infty}^{\infty} C_{ext}(D, m) \frac{dN}{d \ln D} d \ln D \quad (5)$$

Die optische Dicke δ an einer Wellenlänge λ ist als das Integral von β_{ext} über der Höhe z definiert:

$$\delta = \int_0^{\infty} \beta_{ext}(z) dz \quad (6)$$

Die optische Dicke des Aerosols kann anschaulich als Maß für die vorhandene Aerosolkonzentration und die damit verbundene Trübung der Atmosphäre interpretiert werden. Typische Werte für $\lambda = 550$ nm in der Troposphäre liegen zwischen 0.01 und 1, Werte bis zu 10 können bei Sandstürmen allerdings auch erreicht werden (Sokolik, 2001). Für den Spezialfall der vertikalen Integration wird die aerosoloptische Dicke (AOD) auch als aerosoloptische Tiefe (AOT) bezeichnet. Im englischen Sprachgebrauch entspricht der aerosoloptischen Dicke (AOD) die „optical thickness (AOT)“ und der aerosoloptischen Tiefe (AOT) die „optical depth (AOD)“.

Neben der chemischen Zusammensetzung und der Größenverteilung muss auch der Mischungszustand der Partikel bekannt sein. Nach Junge (1952b) kann idealisiert zwischen internem und externem Mischungszustand unterschieden werden. In einer internen Mischung wie z.B. in einer wässrigen Lösung besteht jedes individuelle Partikel zu jeweils gleichen Volumenanteilen aus mehreren chemischen Komponenten. Bei einer externen Mischung dagegen besteht jedes individuelle Partikel nur aus einer einzigen chemischen Substanz und es treten jeweils eine Vielzahl solcher Partikel verschiedener Substanzen auf. Bei Annahme einer idealen internen Mischung können die optischen Eigenschaften des Partikels wie z.B. der Brechungsindex m durch

$$m = \sum_{i=1}^{No. Komp.} \frac{Volumen_i}{Volumen_{gesamt}} m_i \quad (7)$$

bestimmt werden (Ouimette und Flagan, 1982). Für externe Mischungen dagegen muss der Brechungsindex für jede einzelne Komponente separat berücksichtigt werden.

2.2 Aerosolmessungen mit Hilfe von Satelliten

Aerosole hinterlassen entsprechend ihrer Streu- und Absorptionseigenschaften eine charakteristische „Fußspur“ im atmosphärischen Strahlungsfeld. Satelliten messen die in der Atmosphäre und am Erdboden zum Satelliten hin gestreute und reflektierte Strahlung im sichtbaren Spektralbereich bzw. die von Boden und Atmosphäre emittierte Strahlung im infraroten Spektralbereich. Mit Hilfe von Inversionsverfahren kann aus dieser charakteristischen Veränderung der am Satelliten eintreffenden Strahlung auf Eigenschaften des Aerosols zurückgeschlossen werden. Dabei werden im Wesentlichen drei verschiedene Messgeometrien verwendet:

8 Grundlagen

- Messung in nadir-naher Blickrichtung zwischen Satellit und Boden
- Messung in verschiedenen Blickrichtungen
- Messung in schräger Blickrichtung tangential zum Erdboden.

Da Messungen tangential zum Erdboden nur die Stratosphäre erfassen können, wird im Weiteren auf diese Gruppe nicht mehr eingegangen. Mit Ausnahme des NOAA-AVHRR Instruments arbeiten alle verwendeten Instrumente multispektral, d.h. verschiedene schmalbandige Bereiche des Strahlungsspektrums werden vermessen.

Abb. 1 verdeutlicht das Zusammenwirken verschiedener atmosphärischer Konstituenten auf das vom Satelliten gemessene Strahlungssignal. Neben der Rayleighstreuung an Luftmolekülen und der Mie-Streuung an Aerosolen spielen Streuung an und Absorption in Wolken die dominante Rolle. In den jeweiligen Absorptionsbanden müssen auch Spurengase wie z.B. CO₂, H₂O und O₃ beachtet werden. Jegliches Detektionsverfahren für Aerosole muss daher auch Information über Streu- und Absorptionsprozesse anderer atmosphärischer Konstituenten berücksichtigen. Zusätzlich müssen außerdem die dreidimensionalen, spektralen Streueigenschaften des Erdbodens beachtet werden, mit denen die solare Einstrahlung am Erdboden gestreut wird.

Bei den sogenannten Dunkelfeldverfahren werden dunkle Flächen wie z.B. Wasserflächen des freien Ozeans oder großer Seen und dunkle Nadelwälder gesucht. Für diese Flächen kann ein bekannter Wert der Bodenalbedo angenommen werden. Außerdem haben diese dunklen Flächen eine geringe Bodenalbedo. Das somit schwache Bodensignal erlaubt eine genauere Extraktion des Aerosolsignals durch ein besseres Signal-zu-Rausch-Verhältnis. In UV-Aerosolindex-Verfahren wird die spektrale Abhängigkeit der Absorption von Staub- und Rußaerosolen ausgenutzt. Je stärker der spektrale Kontrast zwischen den Wellenlängen 340 und 380 nm geschwächt wird, desto höher ist der Wert des Index und die vorhandene Konzentration von UV-absorbierenden Aerosolen. Des Weiteren werden neuronale Netzwerke zur Auswertung z.B. des MERIS-Sensors eingesetzt. Multianguläre Verfahren nutzen die Eigenschaft von Aerosolen, die atmosphärische Strahlung dreidimensional mit einer durch ihre Phasenfunktion beschriebenen charakteristischen Verteilung zu streuen. Die Messung mit verschiedenen Blickwinkeln ermöglicht so die Erkennung vorhandener Aerosole unter der Annahme von typischen Phasenfunktionen verschiedener Aerosoltypen. Polarisationsmessungen dagegen gebrauchen die durch Aerosole ebenfalls charakteristisch veränderte Polarisation der atmosphärischen Strahlung als Messsignal. Während die meisten Instrumente die AOD nur für einen als fest angenommenen Aerosoltyp bestimmen, liefern neuere Verfahren auch erste Quantifizierungen verschiedener Aerosolkomponenten.

Anhand von tabellarischen Übersichten werden in Anhang B die satellitenbasierten Möglichkeiten der Aerosolfernerkundung verglichen und ausführliche Referenzen gegeben. Die Auswerteverfahren werden anhand der verwendeten Methode, der raum-zeitlichen Auflösung und der Länge der vorhandenen Zeitreihe beschrieben. Dazu werden die ableitbaren geophysikalischen Parameter und die jeweiligen Einschränkungen der einzelnen Instrumente erläutert.

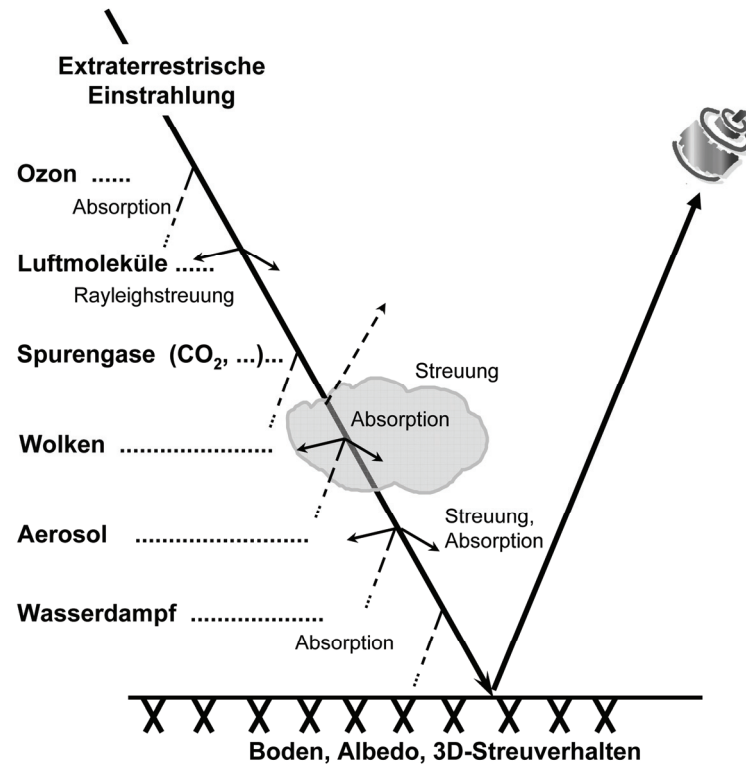


Abb. 1: Einfluß der Atmosphäre auf das Satellitensignal

Für die vorliegende Arbeit mit dem Ziel der komponentenweisen Datenassimilation werden Aerosolmessungen der Satelliten ERS-2 und ENVISAT verwendet, da diese die Messung der AOD verschiedener Aerosolkomponenten (Sulfat/Nitrat, wasserunlösliches Aerosol, Seesalz, industrieller und Biomasse-Ruß, mineralischer Staub) über Landoberflächen erlauben. Die verwendete Methode SYNAER (Holzer-Popp et al., 2002a) wird im folgenden Kapitel näher beschrieben. Neben den ERS-2 und ENVISAT-Instrumenten ist auch das Instrument MISR in der Lage verschiedene Aerosolkomponenten zu detektieren. Andere Satelliteninstrumente dagegen stellen nur die gesamte AOD bereit (z.B. MERIS), liefern Messungen nur über dem Ozean (z.B. AVHRR), detektieren nur eine Untermenge des atmosphärischen Aerosols (z.B. TOMS) oder unterscheiden nur zwischen großem und kleinem Partikelmode (z.B. MODIS). Im Gegensatz zu MISR haben die ENVISAT-Instrumente AATSR und SCIAMACHY jedoch den Vorteil, dass nach Ende der experimentellen ENVISAT-Mission vergleichbare Instrumente auch auf den operationellen METOP-Wettersatelliten zur Verfügung stehen werden. Somit bieten diese Instrumente eine langfristige, d.h. mehr als 10 Jahre andauernde und operationell zur Verfügung stehende Datenreihe, die den langfristigen Einsatz der zu entwickelnden Methode ermöglicht.

2.3 SYNAER – Bestimmung von Aerosolkomponenten

Für die Bestimmung von AOD und Aerosoltyp in der bodennahen Schicht wird das Synergetic Aerosol Retrieval (SYNAER, Holzer-Popp et al., 2002a und b) verwendet. Es nutzt simultane Messungen des Radiometers Along Track Scanning Radiometer (ATSR-2) und des Spektrometers Global Ozone Monitoring Experiment (GOME) im sichtbaren und infraroten Spektralbereich. ATSR-2 misst Reflektanzen und Strahlungstemperaturen in den Kanälen 0.55, 0.67, 0.87, 1.6, 3.7, 11 und 12 μm mit einer hohen räumlichen Auflösung von 1.1 km (nominell) in einem nadir-nahen Streifen von 512 Pixeln. Die Bandbreite der einzelnen Kanäle beträgt 25 – 66 nm. GOME dagegen detektiert reflektierte solare Strahlung mit einer schlechteren räumlichen Pixelauflösung von 320 x 40 bzw. 80 x 40 km^2 , hat dafür aber eine sehr hohe spektrale Auflösung von 0.1 – 0.2 nm im Bereich von 240 bis 790 nm. In SYNAER werden 10 Wellenlängen bei 415, 427, 460, 485, 500, 516, 535, 554, 615 und 675 nm genutzt.

Beide Instrumente sind auf dem ‚European Remote Sensing‘ Satelliten ERS-2 installiert, der die Erde in ca. 780 km Höhe auf einer polaren Umlaufbahn umkreist. Der Überflug findet täglich um 10:30 lokaler Ortszeit statt. Bei einer Umlaufzeit von ca. 100 Minuten und einer Schwadbreite von 960 bzw. 512 km von GOME und ATSR-2 erreicht ERS-2 alle 3-6 Tage eine globale Abdeckung. ERS-2 lieferte von Juli 1996 bis Juni 2003 regelmäßig globale Messungen. Für SYNAER werden bevorzugt Messungen mit kleiner Pixelgröße von 80 x 40 km^2 verwendet, da für Aerosole außerhalb von Quellregionen eine horizontale Variabilität von einigen 10 km typisch ist. Da GOME ursprünglich zur Messung der Ozonverteilung konstruiert wurde, existiert dieser Messmode nur an jeweils 3 Tagen pro Monat.

Der europäische Umweltsatellit ENVISAT liefert seit dem Frühjahr 2003 vergleichbare Messungen um jeweils 10:00 Uhr lokaler Ortszeit. ENVISAT hat ebenfalls einen polarumlaufenden Orbit in einer Höhe von ca. 800 km und eine Umlaufzeit von ca. 100 Minuten. Auf ENVISAT sind die Nachfolgeinstrumente Advanced Along Track Scanning Radiometer (AATSR) und Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Cartography (SCIAMACHY) vorhanden. AATSR ist ein nahezu identischer Nachfolger von ATSR-2. SCIAMACHY dagegen unterscheidet sich von GOME sowohl im vermessenen Spektralbereich als auch in den Messgeometrien. Neben dem mit GOME vergleichbaren Spektralbereich von 240 bis 790 nm wird zusätzlich im nahem und mittlerem Infrarot von 790 – 1750 nm und von 1940 bis 2380 nm gemessen. Außerdem wechselt SCIAMACHY regelmäßig zwischen Messungen im Nadir-Mode und der Horizontsondierung. Für die AOD-Bestimmung in der Grenzschicht kann nur der Nadir-Mode verwendet werden. Für SYNAER bedeutet dies eine im Vergleich zu GOME reduzierte Wiederholrate der Messung – eine globale Abdeckung wird erst nach 12 Tagen erreicht. Allerdings arbeitet SCIAMACHY laufend im sogenannten ‚Kleinen-Pixel-Mode‘ mit einer räumlichen Auflösung von 60 x 30 km^2 , wodurch die Datenverfügbarkeit im Vergleich zu ERS-2 drastisch verbessert wird.

Des Weiteren wurde 2006 der erste europäische METOP-Satellit (Meteorological Operational polar satellites of EUMETSAT) als operationeller Wettersatellit gestartet. Ebenfalls auf einer polarumlaufenden Bahn liefert er mit Hilfe der Geräte AVHRR/3 und GOME-2 bzgl. der spektralen Auflösung mit dem ERS-2 Satelliten vergleichbare Messungen. Der Sichtbereich des AVHRR-3 verbreitert sich dagegen im Vergleich zu AATSR auf ENVISAT von 512 auf 2048 km, wodurch eine globale Abdeckung der Messungen nach jeweils 1-2 Tagen erreicht wird. Die räumliche Auflösung von 80 x 40 km^2 dagegen ist mit der höheren Auflösung des ENVISAT-Satelliten von 60 x 30 km^2 vergleichbar. Mit METOP steht eine der horizontalen und zeitlichen Variabilität des Aerosols entsprechende Datendichte zur Verfügung, die es erlaubt den Schritt von der erfolgreichen Assimilation von Einzel-

ereignissen im Sichtfeld des ENVISAT-Satelliten zur flächendeckenden und täglichen Assimilation zu gehen. SYNAER wird derzeit auf METOP transferiert.

Eine detaillierte Darstellung des SYNAER-Verfahrens findet sich in Holzer-Popp et al. (2002a und b). Die grundlegenden Aerosoltypen des in SYNAER verwendeten Aerosolmodells werden in Kap. 3.2 in der vergleichenden Analyse des SYNAER-Aerosolmodells mit dem EURAD-Aerosolmodul beschrieben.

					Anteile der Basiskomponenten an der opt. Dicke bei 550 nm [%]								
Nr.		Name	Rel. Feuchte [%]	Profil [km]	WASO	INSO	INSL	SSAM	SSCM	BISO	DISO	MITR	MILO
1	21	wasserlöslich, Hintergrund	50/80	2	100								
2	22	kontinental	50	2	95	5	5						
3	23				90	10	10						
4	24				85	15	15						
5	25	maritim	50/80	2	30			70					
6	26				30			65	5				
7	27				15			85					
8	28				15			75	10				
9	29	belastet, wasserlöslich	50/80	2	90						10		
10	30				80						20		
11	31	belastet, kontinental	50	2	80	10	10				10		
12	32				70	10	10				20		
13	33	belastet, maritim	50/80	2	40			45	5		10		
14	34				30			40	10		20		
15	35	Wüstenstaub-ausbruch	50	2 – 4	25							75	75
16	36			3 – 5	25							75	75
17	37			4 – 6	25							75	75
18	38	Biomasse-verbrennung	50/80	3	85					15			
19	39				70					30			
20	40				55					45			

Tab. 1: Anteile der Basiskomponenten an den SYNAER-Aerosolmischungen (WASO = wasserlöslich, INSO = wasserunlöslich / hoher Hematit-Anteil, INSL = wasserunlöslich / geringer Hematit-Anteil, SSAM = Seesalz Akkumulations-Mode, SSCM = Seesalz Grobmode, BISO = Ruß aus Biomasseverbrennung, DISO = Dieselruß, MITR = transportiertes mineralisches Aerosol, MILO = wie MITR aber mit geringem Hematit-Gehalt; Mischungsnummern N und $N + 20$: alternative relative Feuchte oder Zusammensetzung)

SYNAER liefert die AOD bei 550 nm in der Grenzschicht bzw. in einer (im Falle von transportiertem mineralischem Aerosol) in der freien Troposphäre liegenden Aerosolschicht zusammen mit dem Aerosoltyp. Der Aerosoltyp wird als prozentualer Anteil verschiedener Komponenten an der AOD bei 550 nm angegeben (Tab. 1), die einen repräsentativen Querschnitt der natürlich vorkommenden Aerosole darstellen. Diese Komponenten beinhalten

wasserlösliche bzw. wasserunlösliche Aerosole, Ruß, Seesalzaerosole und über weite Strecken transportierten mineralischen Staub aus Wüstenregionen (OPAC Optical Properties of Aerosols and Clouds Datenbank, Hess et al., 1998, und in dieser Arbeit beschriebenen Erweiterungen). Diese Aerosoltypen werden in Strahlungstransportrechnungen innerhalb von SYNAER als sphärische Partikel im Rahmen der Mie-Theorie behandelt. Hierfür wird ein plan-paralleles iteratives SOS-Verfahren verwendet („successive orders of scattering“, Nagel et al., 1978; Popp, 1995). Details der Adaption auf den ENVISAT-Satelliten sind in Holzer-Popp (2008) beschrieben.

Im Strahlungstransport wird die spektrale Abhängigkeit von β_{ext} modelliert; somit kann neben der $\text{AOD}_{550\text{nm}}$ auch die AOD an jeder beliebigen Wellenlänge im Intervall von 300 bis 3000 nm angegeben werden. Die Normierungswellenlänge von 550 nm wird in der Aerosolforschung häufig genutzt, da sie im Maximum der solaren Einstrahlung am Erdboden liegt und der maximalen Empfindlichkeit des menschlichen Auges entspricht. Auch diese Arbeit verwendet für den späteren Vergleich von AOD des Satelliten und des Luftqualitätsmodells für die einzelnen Aerosolkomponenten diese Wellenlänge.

Infolge der Auswertung zweier Instrumente ist das Auswerteverfahren komplex. Abb. 2 gibt eine schematische Übersicht. Mit Hilfe von vortabellierten Strahlungstransportrechnungen können für ein reales GOME-Pixel die von GOME fiktiv gemessenen Spektren für verschiedene Aerosolmischungen simuliert werden. Allerdings müssen hierzu sowohl der Absolutwert als auch die spektrale Signatur der Bodenalbedo und die AOD innerhalb des GOME-Pixels bekannt sein. Diese beiden Größen sind sehr variabel und müssen daher direkt gemessen werden. Sind sie bekannt, so kann aus dem Vergleich der simulierten Spektren mit dem tatsächlich von GOME gemessenen Spektrum nach der Methode der kleinsten Quadrate entschieden werden, welche der verschiedenen Aerosolmischungen das ähnlichste simulierte Spektrum erzeugt hat.

Eine Übersicht der aus den Aerosol-Basiskomponenten erzeugten Aerosolmischungen, ihrer vertikalen Profilstruktur innerhalb und oberhalb der atmosphärischen Grenzschicht und der relativen Feuchte wird in Tab. 1 gegeben.

Nötige Zusatzinformationen liefert das Radiometer ATSR-2. Mit Hilfe der hohen räumlichen Auflösung kann zuerst eine genaue Wolkenerkennung auf 1 km² Basis durchgeführt werden (Gesell, 1989; Kriebel et al., 1989; Kriebel et al., 2003). Anschließend werden unter den wolkenfreien Pixeln die besonders dunklen Pixel in küstenfermem Wasser und dunkle Vegetationstypen wie Nadelwald an Land mit Hilfe des von Aerosolen kaum beeinflussten 1.6 µm Kanals bestimmt (rot markierte Punkte in Abb. 2). Für diese Dunkelfelder werden mit Hilfe einer Korrelation zwischen der Bodenalbedo im sichtbaren Spektralbereich und dem 1.6 µm Kanals die typischerweise sehr kleinen Werte der Bodenalbedo abgeschätzt. Dann wird für die in Tab. 1 gegebenen Aerosolmischungen an diesen Dunkelfeldern mit der dort abgeschätzten Bodenalbedo die AOD mit Hilfe vortabellierter Strahlungstransportrechnungen bestimmt.

Diese wird im folgenden Schritt horizontal interpoliert, sodass nun auch die AOD für die ‚Nicht-Dunkelfelder‘ bekannt ist (grau schattiertes Hintergrundfeld in Abb. 2). Dies erlaubt die Bestimmung der Bodenalbedo an allen und damit auch an ‚Nicht-Dunkelfeldern‘ wiederum mit Hilfe der vortabellierten Strahlungstransportrechnungen (Methode EXACT, Popp, 1995). Nun ist die Bodenalbedo flächendeckend bekannt, allerdings gibt es für jedes Pixel ebenso viele mögliche Werte der Bodenalbedo und der AOD wie Aerosolmischungen angenommen wurden. Verschiedene Aerosolmischungen können Unterschiede von bis zu einer AOD von 1 bei 550 nm verursachen und sind somit keineswegs vernachlässigbar. Die

Entscheidung welche der Aerosolmischungen diejenige mit der höchsten Wahrscheinlichkeit ist, kann daher auf Basis der ATSR-2-Information alleine nicht getroffen werden.

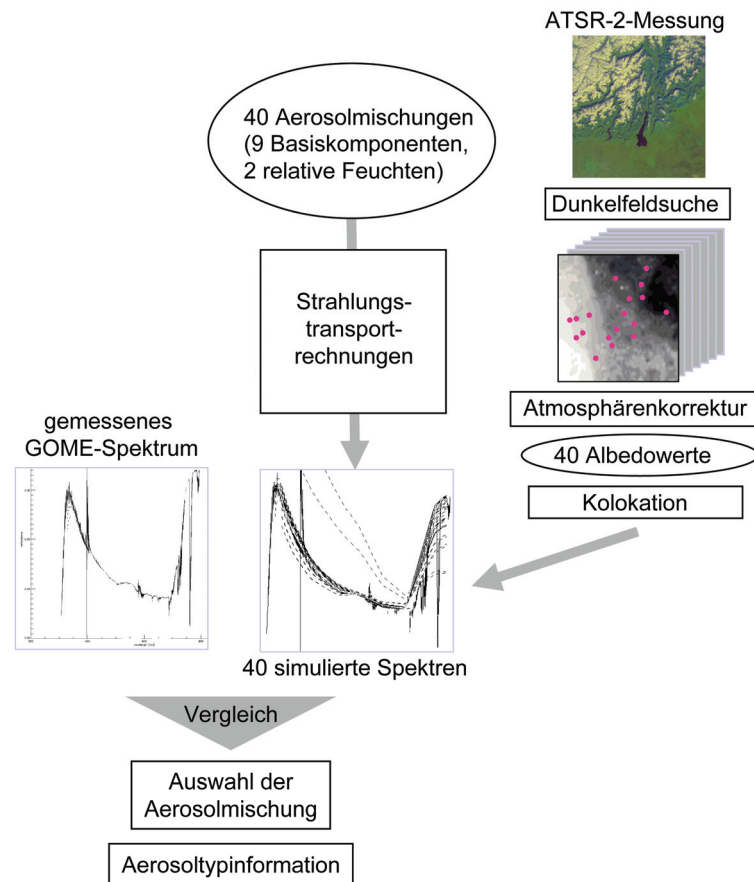


Abb. 2: Schematische Übersicht des ERS-2-SYNAER-Verfahrens

Erst durch die Kombination beider Instrumente lassen sich die Informationslücken jeweils gegenseitig füllen. Der ATSR-2-Anteil am Auswerteverfahren liefert AOD und Bodenalbedo für die betrachtete Region, kann aber den Aerosoltyp nicht bestimmen. Der GOME-Anteil am Auswerteverfahren kann den Aerosoltyp bestimmen, benötigt aber die Bodenalbedo und die AOD aus ATSR-2.

Zusätzlich ermöglicht diese Synergie die Korrektur des Wolkeneinflusses in den vergleichsweise großen GOME-Pixeln. Die hohe räumliche Auflösung von ATSR-2 ermöglicht quasi wie mit einem Mikroskop in das GOME-Pixel hineinzuschauen und den Wolkenbedeckungsgrad zu bestimmen. Die multispektrale ATSR-2 Messung erlaubt zusätzlich auch die Berechnung eines ‚Wolken-Spektrums‘ für das GOME-Pixel, das anschließend von der tatsächlichen GOME-Messung subtrahiert werden kann. GOME-Pixel mit Wolkenbedeckungsgraden von bis zu 35% können so in für das Aerosolretrieval ausreichender Genauigkeit korrigiert werden.

2.4 Das Modellsystem EURAD

Das Modellsystem des European Air Pollution Dispersion Model EURAD (Ebel, 1989, 1997a und b; Memmesheimer et al., 2004; Builtjes et al., 2003) besteht aus verschiedenen, miteinander gekoppelten Modulen:

- dem mesoskaligen Modell MM5 zur Beschreibung meteorologischer Felder (Grell et al., 1994)
- dem Chemie-Transport-Modell CTM-2 für die Gasphasen-Chemie und den Transport (Jakobs et al., 2002)
- dem Modalen Aerosoldynamikmodell MADE zur Modellierung von Aerosoldynamik und -chemie (Ackermann et al., 1998)
- dem Modul SORGAM zur Beschreibung des sekundären Aerosols und seiner Vorläufersubstanzen (Schell et al., 2001)
- und dem EURAD Emissions-Modell EEM, das vorhandene Emissionskataster aufbereitet (Memmesheimer et al., 1995).

Als meteorologische Rand- und Anfangswerte werden Temperatur, Feuchte- und Windfelder und Wolkenverteilungen des amerikanischen NCEP (National Center for Environmental Protection) GFS-Modells verwendet. Als Ergebnis liefert das EURAD-Modellsystem den zeitlichen Verlauf und die räumliche Verteilung atmosphärischer Spurenstoffe sowohl in der Gas- als auch in der Partikelphase.

Das EURAD-Modell kann in verschiedenen, ineinander genesteten, horizontalen Auflösungen betrieben werden. Die Routinevorhersagen haben folgende Modellgitter:

- Modellgitter N0, horizontale Gitterweite 125 oder 56 km für das Gebiet Europa (im Laufe dieser Arbeit wurde die Gitterweite von 56 km eingeführt)
- Modellgitter N1, horizontale Gitterweite 25 km, Zentraleuropa-Ausschnitt
- Modellgitter N2, horizontale Gitterweite 5 km, für regionale Ausschnitte
- Modellgitter N3, horizontale Gitterweite 1 km, angewandt in Städten

Außerdem kann das Modell auf die gesamte Nordhemisphäre angewandt werden. In der Vertikalen werden 23 Schichten zwischen dem Boden und 15 km Höhe modelliert, davon liegen 15 Schichten unterhalb von 3 km.

Die Liste der im Modell mit dem RADM2- oder RACM Chemie-Mechanismus (Stockwell et al., 1990 und 1997) beschriebenen chemischen Substanzen umfasst in der Gasphase primär emittierte anorganische Substanzen NO_2 , NO , NH_3 , SO_2 , SO_4 , CO und weitere 13 organische Substanzen, 16 weitere sekundäre organische Verbindungen in der Gasphase und photochemisch produzierte Folgeprodukte.

MADE und SORGAM beschreiben die Dynamik und Chemie verschiedener Aerosolklassen basierend auf Whitby et al. (1978), Binkowski und Shankar (1995) und Binkowski (1999). In der verwendeten Modellversion werden Seesalz und transportierter Wüstenstaub nicht modelliert. Infolge aktueller Entwicklungsarbeiten sind diese im globalen Maßstab relevanten Komponenten mittlerweile ebenfalls im Modell vorhanden.

Die Aerosolchemie folgt dem verwendeten Aerosolmodul RPMARES (Binkowski, 1999; Ackermann et al., 1998) ergänzt durch die Behandlung von sekundären organischen Aerosolen (Schell, 2001). Dabei wird aufgrund des sehr geringen H_2SO_4 -Dampfdrucks angenommen, dass sich die gesamte Schwefelsäure in Form von Sulfat in der Partikelphase befindet. Nitrat und Ammonium wird als im thermodynamischen Gleichgewicht stehend behandelt. Schwefelsäure entsteht durch die Oxidation von SO_2 in der Gasphase oder durch Flüssigphasenreaktionen in Wolkentropfen. Salpetersäure wird durch die Reaktion von NO_2 mit dem Hydroxylradikal bei Tageslicht gebildet. Nachts dagegen dominiert die Reaktion von NO_3 bzw. N_2O_5 mit H_2O . Zusammen mit Ammoniak entsteht zusätzlich Ammoniumsulfat. Prognostische Variablen sind jedoch nicht die Massenkonzentrationen von Schwefel- und Salpetersäure bzw. Ammoniumsulfat und -nitrat, sondern die jeweils in gelöster Form in einem Aerosoltropfen vorliegenden Sulfat-, Ammonium- und Nitrationen.

Um aus diesen Ionenkonzentrationen auf die für die Berechnung der AOD notwendigen Molekülkonzentrationen zurück zu schließen, muss die im Modell verwendete Gleichgewichtschemie berücksichtigt werden (Binkowski, 1999). Es werden zwei Varianten unterschieden, die durch das molare Verhältnis von Ammonium (NH_4)- und Sulfationen (SO_4) bestimmt werden. Ist dieses Verhältnis größer oder gleich zwei, wird bevorzugt Ammoniumsulfat gebildet. In diesem Fall bleibt ein Rest von Ammoniumionen, die bevorzugt Ammoniumnitrat erzeugen. Erst wenn der Vorrat der zur Verfügung stehenden Ammoniumionen verbraucht ist, entsteht aus dem überschüssigen Nitrat Salpetersäure. Ist jedoch das Ionenverhältnis kleiner als zwei, wird die gesamte Ammoniumkonzentration in Ammoniumsulfat gebunden. Die restlichen Sulfationen werden als Schwefelsäure und die Nitrationen werden als Salpetersäure behandelt, da kein Ammonium mehr zur Bildung von Ammoniumnitrat existiert.

Elementarer Kohlenstoff und primäre organische Aerosole werden durch Quellen in Emissionskatastern beschrieben. Unter den sekundären organischen Aerosolen werden chemisch nicht weiter spezifizierte Reaktionsprodukte von Aromaten, Alkanen, Alkenen, α -Pinen, und Limonen verstanden. Für jede in der Gasphase vorhandene Klasse der Vorläufersubstanzen wird eine vom Dampfdruck der Vorläufersubstanzen abhängende Sättigungskonzentration bestimmt, die beeinflusst, wie viel Aerosolmasse aus der Konzentration der Vorläufersubstanzen gebildet wird. Des Weiteren existiert eine Klasse des als „aus anthropogenen Quellen stammend“ beschriebenen, aber weiter nicht identifizierten Aerosols.

Zur Beschreibung der Emissionsstärken primärer Partikel wird eine am „Nederlandse Organisatie voor toegepast-natuurwetenschappelijk onderzoek“ (TNO) für Europa entwickelte Emissionsdatenbank (Berdowski et al., 1996 und Aktualisierungen unter <http://www.air.sk/tno/cepmeip/>) genutzt. Diese auf dem Referenzjahr 1995 beruhende Datenbank hat eine horizontale Auflösung von 1×0.5 Grad und behandelt verschiedene, anthropogene Verursachergruppen (Verbrennung in verschiedenen Kraftwerkstypen, verschiedene industrielle Produktions- und Verbrennungsprozesse, Verbrauch von Benzin und Diesel in Kraftfahrzeugen und die Produktion von Aerosolpartikeln durch Reifenabrieb, Emissionen in der Landwirtschaft u. a. von Hühnern und Schweinen, Verbrennung in privaten Haushalten und in der Müllverwertung). Dieses Emissionskataster beruht auf Verbrauchs- und Produktionsraten, Bevölkerungs- und Tierbestandsstatistiken u. a. der Internationalen Energie-Agentur (IEA), der Vereinten Nationen, dem Welternährungsprogramm FAO und TNO-eigenen Datenbanken. In EURAD werden die Emissionsstärken von Kohlenmonoxid, PM10 und PM2.5 verwendet. Zusätzlich wird die Bevölkerungsdichte und ein Wochen- und Tagesgang je nach Tagestyp (Samstag, Sonntag, Werktag) berücksichtigt.

Die Emissionsstärke des elementaren Kohlenstoffs E_{EC} kann basierend auf dem Vergleich mit Bodenmessungen in der Modellentwicklungsphase als 0.5% der Emissionsstärke des Kohlenmonoxids angenommen werden. Alternativ kann die Emissionsstärke der PM_{2.5}-Partikel mit Hilfe von für verschiedene Verursachergruppen typischen, empirischen Faktoren in Anteile von organischem Kohlenstoff, elementarem Kohlenstoff und einem nicht näher definierten Restanteil aufgeteilt werden (Andersson-Sköld und Simpson, 2001). Der in dieser Arbeit verwendete Testdatensatz für 1997/98 basiert auf der ersten Möglichkeit während für das Jahr 2003 die Methode nach Andersson-Sköld und Simpson verwendet wurde. Der elementare Kohlenstoff wird ohne eine weitere Annahme zur Injektionshöhe in der untersten Modellschicht eingefügt. Es gilt

$$E_{EC, Akk-Mode} = 0.1 E_{EC, gesamt} \quad E_{EC, Nuk-Mode} = 0.9 E_{EC, gesamt} \quad (8)$$

und für die primären organischen Substanzen $E_{prim,org}$

$$\begin{aligned} E_{prim,org} &= 1.5 E_{EC, gesamt} \\ E_{prim,org, Akk-Mode} &= 0.2 E_{prim,org} \\ E_{prim,org, Nuk-Mode} &= 0.8 E_{prim,org} \end{aligned} \quad (9)$$

Die ebenfalls in der TNO-Datenbank beschriebenen, chemisch aber nicht näher identifizierten Partikelemissionen werden auf alle drei Moden aufgeteilt. Dabei wird der Klasse „sonstiges anthropogenes Aerosol“ im Grobpartikelmode die Emission aller Partikel im Größenintervall von 2.5 bis 10 μm zugeordnet. Für das „primäre Feinaerosol“ wird folgende Abhängigkeit von der PM_{2.5}-Emission und Aufteilung auf Nukleations- und Akkumulationsmode angenommen:

$$\begin{aligned} E_{prim, Feinaerosol} &= 0.4 E_{PM2.5} \\ E_{prim, Feinaerosol, Akk-Mode} &= 0.7 E_{prim, Feinaerosol} \\ E_{prim, Feinaerosol, Nuk-Mode} &= 0.3 E_{prim, Feinaerosol} \end{aligned} \quad (10)$$

Der Wassergehalt der Partikel wird als Funktion der Zusammensetzung, der Temperatur und der relativen Feuchte in der Modellumgebung bestimmt. Daneben werden Wechselwirkungen zwischen Wolken und Aerosolen parametrisiert: Aerosole können einerseits als Kondensationskerne zur Entstehung von Wolkentropfen beitragen, andererseits werden Größenverteilung und chemische Zusammensetzung von Partikeln innerhalb der Wolke verändert. Insbesondere können O_3 und H_2O_2 zusammen mit Schwefel zu Sulfat reagieren. Diese Reaktion ist irreversibel, d.h. nach Auflösung der Wolken bleibt das Sulfat in der Partikelphase erhalten.

Als die Aerosol-Größenverteilung verändernde dynamische Prozesse werden behandelt:

- horizontale und vertikale Advektion
- turbulente Diffusion
- trockene und nasse Deposition
- Sedimentation
- Koagulation innerhalb und zwischen Nukleations- und Akkumulationsmode
- Kondensation gasförmiger Vorläufersubstanzen und Nukleation
- Partikelemission

EURAD modelliert das Aerosol im Nukleations-, Akkumulations- und der Grobpartikelmode, die numerisch als log-normale Größenverteilung dargestellt werden. Im Laufe der Modellierung verändern diese Moden D_m und N , die Modenbreite bleibt dabei aber konstant. Laut Ackermann (1997) und Whitby et al. (1978) müssen die partiellen Differentialgleichungen der Aerosoldynamik für die integralen Momente der Verteilung gelöst werden, falls die Größenverteilung gleichzeitig von mehr als einem Prozess verändert wird. Die integralen Momente sind für jede beliebige natürliche Zahl l größer Null definiert als:

$$M_l = \int_{-\infty}^{\infty} D^l n(\ln D) d(\ln D) \quad (11)$$

Für eine log-normale Größenverteilung ergibt sich:

$$M_l = N D_m^l \exp\left(\frac{l^2}{2} \ln^2 \sigma_m\right) \quad (12)$$

Das nullte Moment M_0 ist dabei identisch mit der Gesamtpartikelzahl der Mode, M_1 ist proportional zum mittleren Durchmesser der Partikel, M_2 ist proportional zur Aerosoloberfläche und M_3 ist proportional zum Aerosolvolumen. Zur vollständigen Beschreibung der Größenverteilung sind z.B. die Gesamtpartikelzahl N , der mittlere Modendurchmesser D_m und die Modenbreite σ_m nötig. Im EURAD-Modell werden hierfür bei konstanter Modenbreite die Gleichungen für M_0 und M_3 genutzt. Als Ergebnis jedes Modellschritts stehen daher neben den aus der Gleichung für M_3 abgeleiteten Massenkonzentrationen der einzelnen modellierten Aerosolklassen auch die Anzahlkonzentrationen zur Verfügung. Verschiedene Aerosolklassen innerhalb einer Mode bilden eine interne Mischung. Die Bestimmung der optischen Eigenschaften eines Partikels kann demzufolge mit Volumenanteilen der Aerosolklassen nach Gl. (7) erfolgen.

2.5 Variationelle Datenassimilation

Definition

Die Datenassimilation kann als Prozess verstanden werden, durch den der Zustand eines Systems wie z.B. der Atmosphäre auf der Grundlage sowohl von vorhandenen Beobachtungen als auch von Ergebnissen aus einem Modell des Systems bestmöglichst geschätzt werden kann. Gleichzeitig kann Datenassimilation aber auch der kontinuierlichen Angleichung eines Modellaufs an die vermutlich wirklichkeitsnähere Entwicklung des Systems, wie sie durch die vorhandenen Beobachtungen beschrieben wird, dienen.

Das Ergebnis der Datenassimilation wird häufig als Analyse bezeichnet. Es wird versucht, durch die Zusammenschau von in Raum und Zeit möglichst dichten Beobachtungen ein Bild des wahrscheinlichsten Systemzustands zu einem bestimmten Zeitpunkt zu diagnostizieren. Jegliche Prognose beruht notwendigerweise auf einer Analyse des aktuellen Zustands des betrachteten Systems. Die Datenassimilation kann somit als ein Prozess interpretiert werden, der als Ergebnis eine solche Analyse liefert.

Historische Entwicklung

Begründet wurde die Datenassimilation in der numerischen Wettervorhersage. Geprägt von einer zunehmenden Zahl von Messungen und dem Wunsch, diese optimal und von der Erfahrung des individuellen Bearbeiters unabhängig als Anfangsbedingungen in die Modellierung einzubringen, wurden zunehmend Methoden zur „objektiven Analyse“ der vorhandenen Beobachtungen entwickelt (Daley, 1991).

Gleichzeitig aber wurde realisiert, dass das Beobachtungsnetz niemals dicht genug sein kann bzw. die beobachteten Größen nur indirekt mit den modellierten Variablen zusammenhängen. Somit ist das Problem unterbestimmt und kann erst mit weiterem a-priori-Wissen wie z.B. einer Klimatologie oder durch die Nutzung physikalischer Zusammenhänge zwischen einzelnen Modellvariablen gelöst werden.

Parallel zu dieser Entwicklung erkannten Gilchrist und Cressman (1954), dass Informationen des vorherigen Prognoselaufs als Startbedingung für einen neuen Modelllauf sehr gut geeignet sind und durch aktuelle Beobachtungen optimal ergänzt werden können. Es darf aber keine einfache Interpolation zwischen den aktuell vorhandenen Messungen durchgeführt werden, da diese in Datenlücken schon durch die vorherige Assimilation im Modell eingeführte „gute“ Beobachtungen wieder überdecken könnte.

Es wurde rasch festgestellt, dass eine einfache Integration von Beobachtungen in das Modell durch ein abstandsgewichtetes Ersetzen des Modellwertes durch die Beobachtung selber („nudging“) zur Simulation unrealistischer Modellzustände führen kann. Im Allgemeinen gehorchen infolge von Messfehlern die Messungen nicht streng den im Modell angenommenen physikalischen Gesetzmäßigkeiten.

Grundlage fast aller operationell verwendeten Verfahren ist die von Gauss eingeführte Methode der kleinsten Quadrate zur Minimierung des Abstandes von Beobachtungen und Modellwerten. Dies führt zur allgemeinen Formulierung der sogenannten Analysegleichungen, die z. B. in Bouttier und Courtier (1999) hergeleitet werden

$$\begin{aligned}\mathbf{x}_a &= \mathbf{x}_b + \mathbf{K} (\mathbf{y}_o - \mathbf{H}\mathbf{x}_b) \\ \mathbf{K} &= \mathbf{B}\mathbf{H}^T (\mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^T + \mathbf{R})^{-1}\end{aligned}\tag{13}$$

Im Rahmen dieser Arbeit wird die von Ide et al. (1997) vorgeschlagene Notation verwendet. Dementsprechend steht der Vektor \mathbf{x} für den Modellzustand zu einem bestimmten Zeitpunkt. Das Modellfeld oder auch die „beste Schätzung“ zu Beginn der Assimilation wird durch den Vektor \mathbf{x}_b beschrieben und dient als erste Annäherung an das zu analysierende Feld („first guess“ oder „model background“). Ziel der Assimilation ist die Bestimmung der Analyse \mathbf{x}_a . Die Beobachtungen werden als Elemente des eindimensionalen Vektors \mathbf{y}_o eingebracht, während \mathbf{R} die Fehlerkovarianzmatrix der Beobachtungen enthält und \mathbf{B} für die Fehlerkovarianzmatrix des Hintergrundfeldes steht. Der Operator \mathbf{H} bildet einen Modellzustand \mathbf{x} in den Raum der Beobachtungen ab. Er wird als „Beobachtungsoperator“ oder als „Vorwärtsoperator“ bezeichnet. \mathbf{H} angewandt auf den Modellzustand \mathbf{x} wird auch als „Modelläquivalent der Beobachtungen“ bezeichnet. \mathbf{H} besteht häufig aus raum-zeitlichen Interpolationsvorschriften, die das Modellgitter auf die Beobachtungsorte abbilden und aus Konversionsregeln, die die Umrechnung zwischen Modellvariablen und beobachteten Variablen beschreiben. Die Matrix \mathbf{K} wird als „Kalman gain matrix“ bezeichnet und beschreibt die Gewichtung von Modell und Beobachtungen im einzelnen Assimilationsschritt.

Übergeordnetes Ziel dieses linearen Ansatzes ist es, eine möglichst fehlerfreie Schätzung des „wahren“ Modellzustands d.h. einen „Best Linear Unbiased Estimator – BLUE“ zu ermöglichen (Talagrand, 1997). Unter einem unverzerrten Schätzer („un-biased estimator“) wird in der Statistik ein Verfahren verstanden, das für die Differenz zwischen Analysewert und „wahren“ Wert den Erwartungswert Null besitzt. Dieser lineare Ansatz führt zu einer analytisch oder numerisch mit vertretbarem Rechenaufwand lösbaren Problemformulierung, setzt aber auch die Erfüllung folgender Bedingungen voraus:

- Die Gültigkeit der lokalen linearen Näherung sowohl des verwendeten Modells als auch des verwendeten Beobachtungsoperators in einer gewissen Umgebung

um den gerade vorliegenden Systemzustand. Dies bedeutet in der Praxis, dass der Term $\mathbf{x} - \mathbf{x}_b$ nicht zu groß werden darf.

- Eine effiziente Qualitätskontrolle der Beobachtungen, da in einer Gauss-Verteilung Ausreißer als sehr unwahrscheinlich eingeschätzt werden und daher häufig als „gute“ Messungen in das Modell integriert werden.
- Das Vorhandensein eines Erwartungswerts von Beobachtungs- und Modellfehler von Null, d.h. Modelle und Beobachtungen sollten frei von systematischen Fehlern sein.
- Fehler in Modell und Beobachtungen sollten nicht miteinander korreliert sein.

In den 1960er Jahren wurde zur analytischen Lösung der Analysegleichung die Methode der „optimum interpolation“ entwickelt (OI-Methode, z.B. Gandin, 1963 – zitiert in Daley, 1991; Lorenc, 1981 und 1986). Dies ist der erste Ansatz, der sowohl Modell- als auch Beobachtungsfehler bei der Integration von Beobachtungen ins Modell berücksichtigt. Durch die bei der expliziten Berechnung der „gain matrix“ \mathbf{K} verwendete Inversion großer Matrizen waren aber nur eingeschränkte Regionen, geringe räumliche Auflösungen oder eine geringe Anzahl von Modellparametern gleichzeitig und damit im Sinne eines „Best Linear Unbiased Estimator“ zu behandeln.

Variationelle Datenassimilation

Zusammen mit den Datenvolumina der aufkommenden satellitengestützten Fernerkundung führte dies in den 1990er Jahren zur Verbreitung der variationellen Datenassimilationsverfahren, bei denen statt der expliziten Lösung großer linearer Gleichungssysteme eine Kostenfunktion genutzt wird, um die Abweichungen zwischen Modellwerten und Beobachtungen zu minimieren (Parrish and Derber, 1992; Courtier et al., 1998). Dies ermöglicht auch die Einbindung von satellitengestützten Beobachtungen, bei denen sich der Operator \mathbf{H} nicht als einfache Matrix beschreiben lässt (z. B. im Falle von Strahlungstransportrechnungen). Die Annahme einer gauss-verteilten Fehlercharakteristik als Grundlage der Analysegleichung hat eine quadratische Kostenfunktion zur Folge, die sich durch ein eindeutiges Minimum auszeichnet. Ergebnis dieser Minimierung ist der sogenannte Innovationsvektor, der den Unterschied zwischen dem Modellzustand vor der Assimilation und nach der Assimilation beschreibt. Aus theoretischer Sicht sind die variationellen und die OI-Methoden äquivalent. In der Praxis jedoch ist diese Äquivalenz i. A. nicht gegeben, da die OI-Methode auf die sequentielle Lösung vieler „kleiner“ Probleme z.B. durch Aufteilung des Modellgebiets angewiesen ist und der \mathbf{H} -Operator oft nicht in Matrixform darstellbar ist.

Bei den variationellen Verfahren muss zwischen der dreidimensionalen und der vierdimensionalen Analyse unterschieden werden (3D-Var oder 4D-Var-Verfahren). 3D-Var-Verfahren verändern den Modellzustand zu einem bestimmten Zeitpunkt in den drei räumlichen Koordinaten auf der Basis aller zum Zeitpunkt der Analyse oder in einem engen Analyse-Zeitfenster von mehreren Stunden vorliegenden Beobachtungen. Dagegen berücksichtigen 4D-Var-Verfahren den zeitlichen Verlauf des Modells und den exakten Zeitpunkt der vorliegenden Beobachtungen. Sie versuchen die Anfangsbedingungen des gesamten Modellaufs so zu verändern, dass alle Beobachtungen im betrachteten Analysezeitraum optimal durch den Modellauf wiedergegeben werden. Derzeit entsprechen 4D-Var-Verfahren am ehesten der Forderung nach einem „Best Linear Unbiased Estimate“-Verfahren. Allerdings setzt der Einsatz der 4D-Var-Assimilation das Vorhandensein eines adjungierten Modells voraus, mit dessen Hilfe zu einer Serie von Beobachtungen die optimalen Anfangsbedingungen für den anschließenden Modellauf bestimmt werden können. Ein solches adjungiertes Aerosolmodell liegt für Chemie-Transport-Modelle noch nicht vor.

Daher wird in dieser Arbeit ein 3D-Var-Verfahren eingesetzt und im Folgenden wird nur noch die dreidimensionale variationelle Assimilation beschrieben.

Die in variationellen Verfahren verwendete Kostenfunktion setzt sich in der Regel aus zwei Anteilen für das Modell und die Beobachtungen zusammen

$$\begin{aligned} J(\mathbf{x}) &= \frac{1}{2}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_b)^T \mathbf{B}^{-1} (\mathbf{x} - \mathbf{x}_b) + \frac{1}{2}(\mathbf{y}_o - \mathbf{H} \mathbf{x}_b)^T \mathbf{R}^{-1} (\mathbf{y}_o - \mathbf{H} \mathbf{x}_b) \\ &= J_b(\mathbf{x}) + J_o(\mathbf{x}) \end{aligned} \quad (14)$$

Der in der Minimierung benötigte Gradient der Kostenfunktion lautet

$$\nabla J(\mathbf{x}) = 2 \mathbf{B}^{-1} (\mathbf{x} - \mathbf{x}_b) - 2 \mathbf{H}^T \mathbf{R}^{-1} (\mathbf{y} - \mathbf{H} \mathbf{x}) \quad (15)$$

Abb. 3 stellt schematisch das Zusammenwirken von Kostenfunktion des Modellhintergrunds J_b und Kostenfunktion der Beobachtungen J_o für den skalaren Fall dar. Während das Minimum der Kostenfunktion des Modellhintergrunds den Modellzustand zu Beginn der Assimilation \mathbf{x}_b wiedergibt, finden sich die Beobachtung \mathbf{y}_o dagegen im Minimum der Kostenfunktion der Beobachtungen. Die Minimierung der Summe beider Kostenfunktionen definiert das neue Minimum und somit die Analyse \mathbf{x}_a .

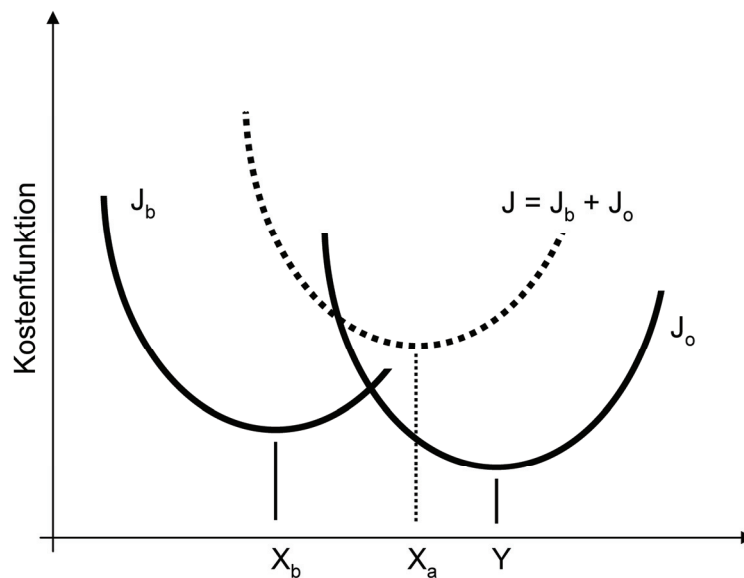


Abb. 3: Das Zusammenspiel der Kostenfunktionen J_b und J_o
(nach Bouttier und Courtier, 1999)

Als Innovationsvektor oder Beobachtungszinkrement wird die Differenz von Beobachtungen und dem Modelläquivalent der Beobachtungen ($\mathbf{y} - \mathbf{H} \mathbf{x}$) bezeichnet. Als Analyseinkrement wird ist dagegen die Differenz des Modellzustandes zum Abschluss des Assimilationsschritts und dem Modellzustand zu Assimilationbeginn ($\mathbf{x}_a - \mathbf{x}_b$) definiert. Dieses Analyseinkrement wird zum Abschluss eines Assimilationsschritts dem Modell aufgeprägt und verändert so den aktuellen Modellzustand.

3 Der H-Operator und seine Sensitivitäten

Nach einer kurzen Beschreibung der 3D-Var-Methode soll nun das an das EURAD-Modell und die SYNAER-Messungen angepasste Assimilationskonzept erläutert werden. In den nachfolgenden Kapiteln wird anschließend auf Teilaspekte eingegangen.

3.1 Konzept zur Assimilation von SYNAER Aerosolmessungen

Im späteren, operationellen Einsatz werden Beobachtungen regelmäßig in festgelegten Zeitintervallen (z.B. täglich oder alle 6 Stunden) sequentiell in das Modell integriert. Infolge der eingeschränkten Verfügbarkeit von ERS-2-Beobachtungen nur am 5., 15., und 25. eines Monats kann in der Entwicklungsphase jedoch statt der sequentiellen Assimilation zunächst nur der im operationellen Betrieb jeweils zu einem bestimmten Zeitpunkt stattfindende, einzelne Assimilationsschritt untersucht werden.

In der Konzeptionsphase stellt sich die Frage, für welche Variablen das 3D-Var-Verfahren eingesetzt werden soll: Chemie-Transportmodelle wie EURAD behandeln Aerosole aus chemischer Sicht. Es werden Massenkonzentrationen einzelner Aerosolsubstanzen oder -klassen angegeben, ergänzt um Information über die modellierte Größenverteilung. Satelliten dagegen vermessen die Strahlung am Oberrand der Atmosphäre und erkennen Aerosole an deren spezifischer optischer Wirkung. Diese wird mit physikalischen Größen wie z.B. der spektralen AOD beschrieben. Demzufolge liegen als Beobachtungen die AOD für jeweils eine der 40 Aerosolmischungen (Tab. 1) vor. Das Modell dagegen hat als standardmäßige Ausgabe die Massenkonzentration aller Partikel kleiner als 10 oder 2.5 μm (PM10 oder PM2.5), enthält jedoch modell-intern die Massenkonzentrationen verschiedener Aerosolsubstanzen. Diese in Modell und Messung vorhandene Unterscheidung ermöglicht eine komponentenweise Assimilation, d.h. die getrennte Behandlung von z.B. Ruß- oder Nitrat/Sulfat-Aerosolen.

Prinzipiell kann das 3D-Var-Verfahren für die modell-internen Variablen oder die Beobachtungsgrößen angewandt werden. Hierfür müssen entweder die Modell-Variablen in die entsprechenden Beobachtungsgrößen transformiert oder umgekehrt die Beobachtungsgrößen in die entsprechenden Modell-Variablen umgewandelt werden. Die AOD-Beobachtungen lassen sich auf einen Vektorraum der AOD von wenigen Basiskomponenten (wasserlöslich, wasserunlöslich, Seesalzpartikel, Ruß und mineralisches Aerosol, Tab. 1) zurückführen. Im Gegensatz dazu stellt EURAD-MADE-SORGAM modell-intern mit 29 verschiedenen Aerosolklassen einen wesentlich höher dimensionierten Vektorraum zur Verfügung, der aber in dieser Detailtiefe von den Beobachtungen nicht erfasst werden kann.

Es ist daher rechenzeit-reduzierend, typunterscheidend auf der Ebene der in den Beobachtungen genutzten Aerosolkomponenten zu assimilieren.

Des Weiteren liegen die Beobachtungen als vertikale Säuleninformation ohne eine gemessene Vertikalverteilung vor, während das Modell über 23 Höschichten verfügt. Deshalb wird der Assimilationsschritt für die AOD der atmosphärischen Säule über einer EURAD-Modellgitterbox durchgeführt. Das dreidimensionale Problem wird so auf ein zweidimensionales Problem mit einer statt 23 vertikaler Schichten reduziert.

Abschließend wird das AOD-Analyseinkrement in einer Post-Prozessierung auf die Aerosolmassenkonzentrationen der einzelnen Höschichten angewandt und somit eine dreidimensionale Modifikation des Modellhintergrunds erreicht.

Abb. 4 zeigt diesen Ablauf schematisch. Es müssen folgende Schritte durchgeführt werden:

1. Abbildung der $AOD_{total,550nm}$ in die AOD aller SYNAER-Basiskomponenten als Prä-Prozessierung entsprechend den in Tab. 1 für jede j -te Basiskomponente angegebenen prozentualen Anteilen f_j in jeder Aerosolmischung:

$$y_j = f_j AOD_{total,550nm} \quad j=1, \text{Anzahl der Basiskomponenten} \quad (16)$$

2. Abbildung der vertikal aufgelösten Massenkonzentrationen $x_{b,mass}$ einzelner Aerosolklassen in verschiedenen Größenverteilungs-Moden (Modellzustand) in die für die atmosphärische Säule geltende AOD_{550nm} aller SYNAER-Basiskomponenten ($x_{b,AOD}$):

$$x_{b,AOD,j} = \int_{k=1}^{k_{max}} \sum_i \int_{-\infty}^{\infty} C_{ext,k,i}(D_{k,i}, m_{k,i}) \frac{dN_{k,i}}{d \ln D} d \ln D dz \quad \forall \text{Basiskomponenten} \quad (17)$$

Dabei steht i für die an der j -ten Basiskomponente beteiligten Größenverteilungs-Modi, k für den Index einer Vertikalschicht, C_{ext} für den von Partikeldurchmesser D und komplexem Brechungsindex m abhängigen Extinktionsquerschnitt eines Partikels, $N_{k,i}$ für die Gesamtpartikelzahl der i -ten Mode in der k -ten Schicht und z für die Höhe der Schichtgrenzen.

3. Suche von raum-zeitlichen Koinzidenzen in Beobachtungs- und Modellraum

Schritt 2 und 3 bilden zusammen den Beobachtungsoperator \mathbf{H} .

4. Anwendung der 2D-Var-Methode und Bestimmung der Analyseinkremente für jede SYNAER-Basiskomponente:

$$\Delta \mathbf{x}_{a,AOD} = \mathbf{K} (\mathbf{y}_o - \mathbf{H} \mathbf{x}_{b,mass}) \quad \forall \text{Basiskomponenten} \quad (18)$$

5. Anwendung des adjungierten Beobachtungsoperators zur Rücktransformation der durch die Assimilation veränderten $x_{a,AOD}$ aller Basiskomponenten in die vertikal aufgelösten Massenkonzentrationen verschiedener Aerosolklassen ($x_{a,mass}$).

$$\mathbf{x}_{a,mass} = \mathbf{H}^T \mathbf{x}_{a,aod} \quad \forall \text{Massenkonzentrationen} \quad (19)$$

Dabei werden Größen- und Vertikalverteilung des Aerosols im Modell nicht verändert, da die Beobachtungen keine solche Information enthalten.

Während Schritt Nr. 1 durch die einfache Inversion der Mischungstabelle (Tab. 1) und Schritt Nr. 3 durch eine raum-zeitliche Zuordnung von Beobachtungen und Modellwerten erfolgen können, bedürfen die Schritte Nr. 2, 4 und 5 einer vertieften Analyse.

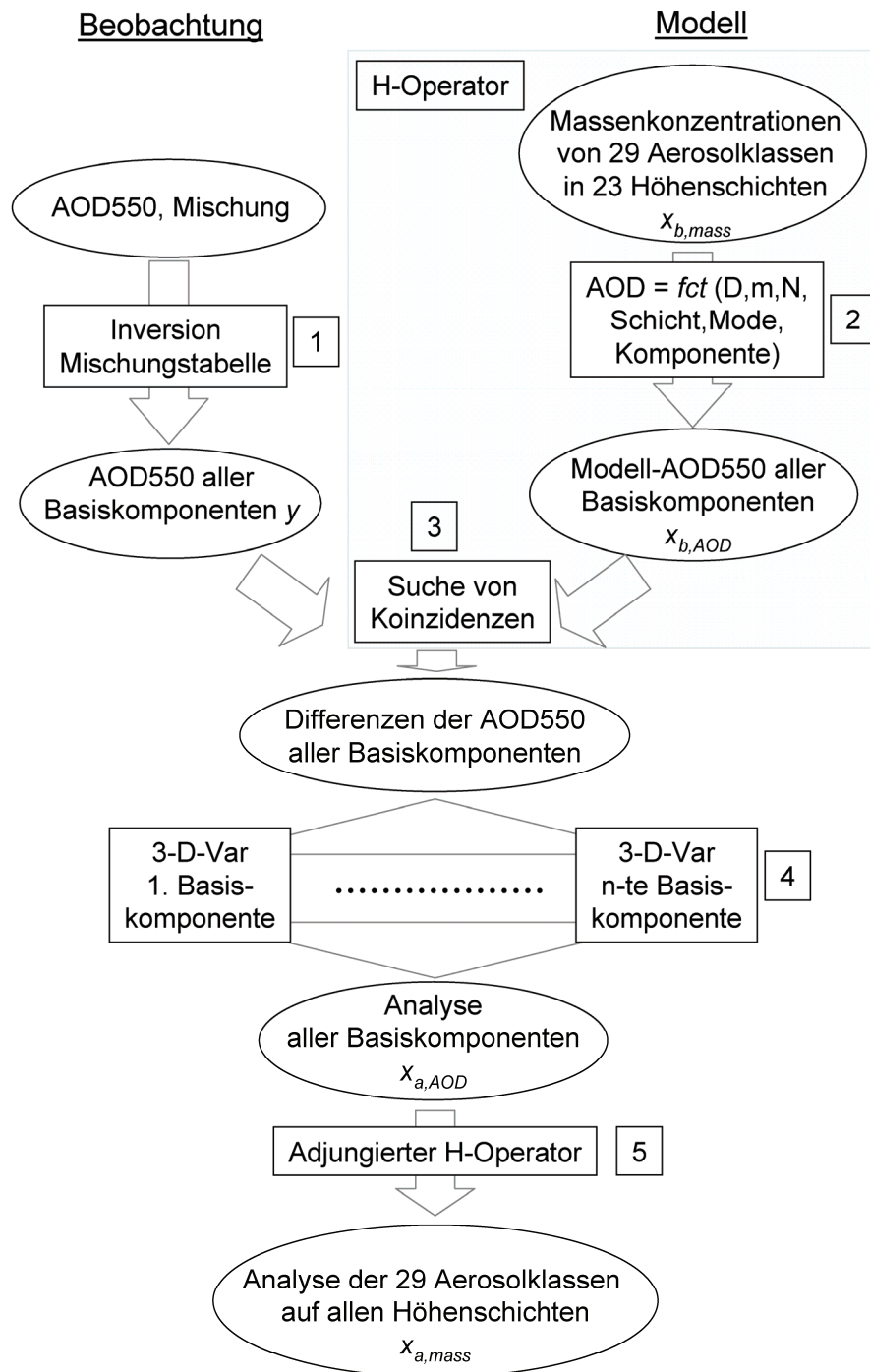


Abb. 4: Schematische Darstellung des Assimilationskonzepts

3.2 Vergleichbarkeit von SYNAER- und EURAD-Aerosoltypen

Zunächst werden die im Rahmen dieser Arbeit vorgenommenen Erweiterungen der SYNAER-Beobachtungen beschrieben. Anschließend wird die chemische Zusammensetzung der EURAD-Aerosolklassen untersucht und eine Zuordnung von EURAD-Aerosolklassen zu SYNAER-Komponenten vorgenommen.

Die OPAC-Aerosolkomponenten

Die physikalische Beschreibung von Aerosolen in SYNAER beruht auf von Hess et al. (1998) vorgeschlagenen optischen Eigenschaften: In der „Optical Properties of Aerosols and Clouds (OPAC)“ – Datenbank werden auf der Basis von In-Situ-Messungen verschiedene global repräsentative Aerosolkomponenten definiert. Dies umfasst wasserlösliche und wasserunlösliche Partikel, Ruß, Seesalz, mineralische Aerosole und stratosphärische Sulfataerosole. Jede Komponente beschreibt eine innere Mischung von chemischen Substanzen, die aus einer ähnlichen Quelle stammen und ähnliche optische Eigenschaften aufweisen. Für jede Komponente sind die physikalischen Eigenschaften komplexer Brechungsindex, Größenverteilung, Extinktions-, Streu- und Absorptionskoeffizienten, Einfachstreuquerschnitt, Asymmetrieparameter und Phasenfunktion spektral aufgelöst zwischen 0,25 und 40 μm unter der Annahme sphärischer Partikel angegeben. Zusätzlich wird der Partikelradius von quellenden Aerosolkomponenten als Funktion der relativen Feuchtigkeit in der Partikelumgebung dargestellt. Aus diesen Komponenten kann jede beliebige externe Mischung zusammengesetzt und mit ihren physikalischen Eigenschaften beschrieben werden.

Die rußhaltigen Aerosolkomponenten in SYNAER

Die OPAC-Rußkomponente SOOT repräsentiert reinen, absorbierenden Kohlenstoff aus natürlicher und anthropogener Verbrennung wie z.B. bei Waldbränden, in Industrie und Haushalten und dem Verkehr.

Schnaiter et al. (2003) finden $k = 0.67$ bei 550 nm für Dieselruß, während die OPAC-Komponente SOOT mit $k = 0.44$ modelliert wird (Abb. 6). Für $n = 1.49$ dagegen liegen die Messungen von Schnaiter et al. (2003) niedriger als die SOOT-Komponente mit $n = 1.75$ (Abb. 5). Beide Ansätze beruhen auf vergleichbaren Größenverteilungen mit $D_m = 0.024 \mu\text{m}$ bei OPAC und $0.026 \mu\text{m}$ bei Schnaiter et al. (2003). Infolge der hohen Abhängigkeit von β_{ext} vom Imaginärteil des Brechungsindex (s. Kap. 3.5) wird in SYNAER daher die zusätzliche Komponente Dieselruß (DISO) eingeführt.

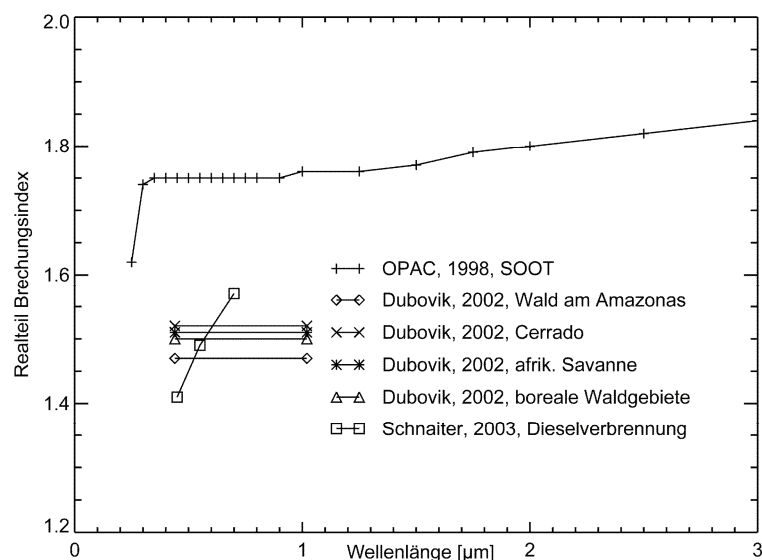


Abb. 5: Messungen des Realteils des komplexen Brechungsindex für Ruß

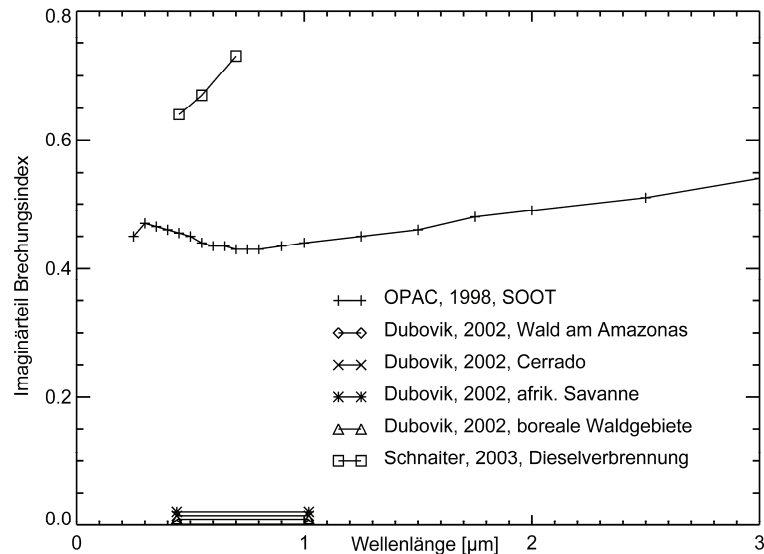


Abb. 6: Messungen des Imaginärteils des komplexen Brechungsindex für Ruß

Für den durch Biomasseverbrennung entstehenden Ruß ist die SOOT-Komponente ebenfalls nicht repräsentativ. In Folge der in der Natur häufig unvollständigen Verbrennung entsteht neben Kohlenstoff eine Vielzahl organischer Rußbestandteile mit geringer Absorptionswirkung. Dubovik et al. (2002) und Guyon et al. (2003) bestimmen k -Werte von 0.0009 bis 0.02 für Waldgebiete am Amazonas, den südamerikanischen Cerrado, die afrikanische Savanne und boreale Waldgebiete. Entsprechend dem Prinzip der externen Mischung in der OPAC-Datenbank könnte dies auch durch eine Mischung aus SOOT- und WASO-Komponente modelliert werden. Allerdings würde durch diese zusammengesetzte Modellierung einer einzelnen Aerosolquelle das bisherige OPAC-Konzept der für jeweils typische Aerosolquellen repräsentativen Aerosolkomponenten verletzt. Daher wurde in SYNAER die neue Komponente „biomass soot“ (BISO) mit einer geringeren Absorption eingeführt.

Die mineralischen Aerosolkomponenten in SYNAER

Quellennahes mineralisches Aerosol wird in OPAC in die Nukleations-, Akkumulations- und Grobmoden unterteilt, um die Abhängigkeit der Größenverteilung von der bodennahen Windgeschwindigkeit zu modellieren. Diese nur in Quellnähe repräsentativen Verteilungen werden in SYNAER nicht weiter betrachtet. Die Komponente „transportiertes mineralisches Aerosol“ MITR dagegen beschreibt Wüstenstaub als eine Mischung aus Quarz, Tonmineralen und Hematit, die schon über große Distanzen transportiert wurde und dessen größte Partikel bereits sedimentiert sind.

In der Literatur (z. B. Moulin et al., 2001) wird diskutiert, dass frühere Brechungsindexmessungen (z.B. Patterson et al., 1977) in Regionen des Sahel-Gebiets mit einem hohen Hematit-Anteil durchgeführt wurden. Hematit ist ein sehr stark absorbierendes Material, dass auch in kleinen Mengenanteilen die optischen Eigenschaften signifikant verändert. Neuere Messungen (Dubovik et al., 2002; Moulin et al., 2001; Sinyuk, 2003) in den Regionen Bahrain, Cape Verde, Sahara, und Saudi-Arabien mit einem typischerweise geringeren Hematit-Anteil weisen mit k von 0.001 bis 0.002 einen deutlich kleineren Wert als der in OPAC beschriebene Wert von 0.0055 auf (Abb. 7).

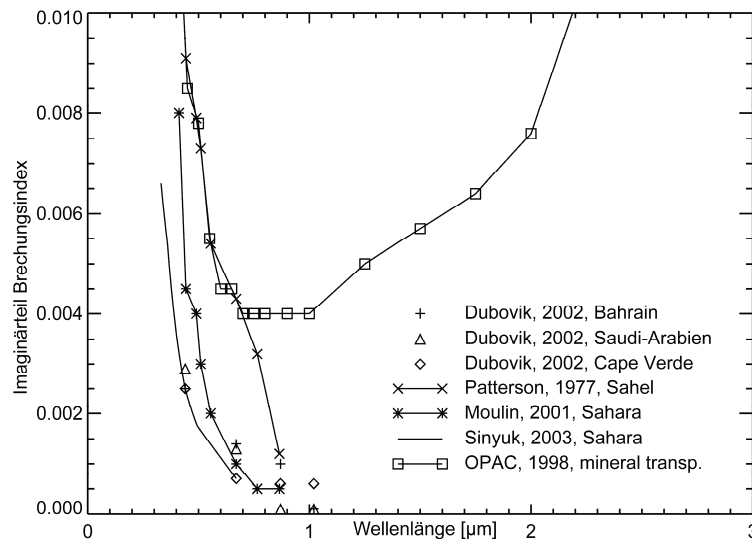


Abb. 7: Imaginärteil des Brechungsindex für mineralische Aerosolpartikel

Globale Karten (z.B. Claquin et al., 1999) lassen erkennen, dass Regionen mit solch hohem Hematit-Anteil nur in der Sahelzone, Nord-Indien und Ost-Australien vorkommen und die in OPAC beschriebene Absorption im globalen Mittel als zu hoch eingeschätzt werden muss. Gestützt wird diese Vermutung auch durch Messungen des GOES-8 Satelliten, bei denen sich die am Boden gemessene Konzentration des mineralischen Aerosols am besten mit einem angenommenen $k = 0.0015$ reproduzieren lassen (Wang et al., 2003). Satheesh et al. (2005) diskutiert zusätzlich, dass sich die hohen k -Werte in OPAC evt. auch durch die Vermischung von Staubaerosolen mit kleineren Anteilen von Biomasse-Ruß erklären lassen. Daher wurde in SYNAER zusätzlich eine gering absorbierende Komponente mit $k = 0.0019$ bei 550 nm eingeführt (MILO).

Die wasserunlöslichen Aerosolkomponenten in SYNAER

Die OPAC-Komponente wasserunlöslicher Aerosole (INSO) enthält Partikel, die durch Bodenerosion, Reifenabrieb und Industrieprozesse entstehen. Es kann sich aber auch um biogenes Material wie Pollen, Sporen oder verfaulendes Laub handeln. Es sind mittelgroße Partikel mit einem mittleren Partikelradius von $0.47 \mu\text{m}$, die infolge ihrer Größe eine kurze Lebensdauer haben.

OPAC beschreibt die mineralische und die wasserunlösliche Komponente mit einem identischen m bei verschiedenen Größenverteilungen. Infolge der Entwicklung des Wissensstands zum Absorptionsverhalten mineralischer Aerosole wird nun zwischen der bisherigen INSO und einer neuen Komponente INSL mit geringerer Absorption analog zur Komponente MILO unterschieden.

Zusammenfassung aller SYNAER-Komponenten

Eine Übersicht der in SYNAER genutzten Aerosolkomponenten mit ihren jeweiligen physikalischen Eigenschaften, d.h. Realteil n und Imaginärteil k des komplexen Brechungsindex und mittlerer Modenradius R_m und Modenbreite σ_m der log-normalen Größenverteilungen ist in Tab. 2 gegeben. In SYNAER werden quellende Komponenten mit einer relativen Luftfeuchte von 50 und 80% modelliert. Im EURAD-Modell dagegen wird der Wassergehalt explizit modelliert und die weiteren Aerosolklassen werden als trocken angenommen. Daher werden in dieser Tabelle die Eigenschaften der SYNAER-Komponenten für eine relative Luftfeuchte von 0 % angegeben.

Aerosolkomponente	Kurzname	n	k	R_m [μm]	σ_m
wasserlöslich	WASO	1.53	0.006	0.0212	2.24
Dieselfuß	DISO	1.49	0.67	0.0118	2.0
Ruß aus Biomasseverbrennung	BISO	1.63	0.036	0.0118	2.0
mineralisch	MITR	1.53	0.0055	0.5	2.2
mineralisch, geringe Absorption	MILO	1.53	0.0019	0.5	2.2
wasserunlöslich	INSO	1.53	0.008	0.471	2.51
wasserunlöslich, geringe Absorption	INSL	1.53	0.0019	0.471	2.51
Seesalz, Akkumulationsmode	SSAM	1.5	0.00000001	0.209	2.03
Seesalz, Grobmode	SSCM	1.5	0.00000001	1.75	2.03

Tab. 2: Eigenschaften der erweiterten SYNAER-Aerosolkomponenten
Real- und Imaginärteil des komplexen Brechungsindex, mittlerer Modenradius und Modenbreite für die jeweils trockenen Aerosolkomponenten (relative Feuchte 0%).

EURAD-Aerosolklassen

Die Standardausgabe umfassen mit O₃, NO, NO₂, SO₂, CO, Benzol und PM₁₀ nur die Luftqualitätsparameter. Für die komponentenweise Assimilation muss auf die den PM₁₀-Wert bildenden internen Aerosolklassen (Tab. 3 und Tab. 4) zurückgegriffen werden.

EURAD MADE Aerosolklassen (modell-interner Name)	Beschreibung
VSO4AJ (MADE)	SO ₄ , Akkumulationsmode
VSO4AI (MADE)	SO ₄ , Nukleationsmode
VNH4AJ (MADE)	NH ₄ , Akkumulationsmode
VNH4AI (MADE)	NH ₄ , Nukleationsmode
VNO3AJ (MADE)	NO ₃ , Akkumulationsmode
VNO3AI (MADE)	NO ₃ , Nukleationsmode
ORGP AJ (MADE)	Primärer organischer Kohlenstoff, Akkumulationsmode
ORGP AI (MADE)	Primärer organischer Kohlenstoff, Nukleationsmode
VECJ (MADE)	Elementarer Kohlenstoff, Akkumulationsmode
VECI (MADE)	Elementarer Kohlenstoff, Nukleationsmode
VP25AJ (MADE)	Nicht-identifizierbare anthropogene Partikel, Akkumulationsmode
VP25AI (MADE)	Nicht-identifizierbare anthropogene Partikel, Nukleationsmode
VANTHA (MADE)	Sonstiges anthropogenes Aerosol, Grobpartikelmode
VH2OAJ (MADE)	Flüssigwassergehalt, Akkumulationsmode
VH2OAI (MADE)	Flüssigwassergehalt, Nukleationsmode

Tab. 3: Übersicht der in den EURAD-MADE behandelten Aerosolklassen

Es stellt sich nun die Frage nach der chemischen Zusammensetzung dieser Aerosolklassen. Während die aus den anorganischen Ionen in der wässrigen Lösung des Partikels gebildeten Schwefelsäure, Ammoniumsulfat, Ammoniumnitrat und Salpetersäure wohl bekannt sind, fehlt diese Information bisher für die organischen Aerosolsubstanzen wie z.B. die ‚Reaktionsprodukte der Alkane‘ oder die Partikel der Grobmode. Bei den sekundären organischen Substanzen werden für verschiedene gasförmige Vorläufersubstanzen Partikelproduktionsraten angenommen (Schell, 2001), es liegen aber im Modell keine Informationen vor, um welche chemischen Substanzen es sich bei diesen Reaktionsprodukten handelt. Für die primären organischen Aerosole und die Partikel im Grobmode sind Massenkonzentrationen der Emission bekannt, die chemische Zusammensetzung ist jedoch bisher ebenfalls nicht näher beschrieben. Um die Zuordnung zwischen SYNAER und EURAD und die Festlegung eines Brechungsindex zu ermöglichen, sollten jedoch die chemische Zusammensetzung und die Wasserlöslichkeit der dominierenden Substanzen bekannt sein. Es wurde daher eine Literaturrecherche der in den letzten Jahren zunehmend verfügbaren Labor- und in-situ-Messungen atmosphären-chemischen Messungen durchgeführt (Anhang C).

EURAD SORGAM Aerosolklassen (modell-interner Name)	Beschreibung
VARO1J (SORGAM)	Anthropogene sekundäre organische Aerosole (SOA) mit Aromaten als Vorläufer, Sättigungsdampfdruck (bei 298 K): 5.7E-5 Pa, Akkumulationsmode
VARO1I (SORGAM)	Anthropogene SOA mit Aromaten als Vorläufersubstanzen, Sättigungsdampfdruck (bei 298 K): 5.7E-5 Pa, Nukleationsmode
VARO2J (SORGAM)	Anthropogene SOA mit Aromaten als Vorläufersubstanzen, Sättigungsdampfdruck (bei 298 K): 1.6E-3 Pa, Akkumulationsmode
VARO2I (SORGAM)	Anthropogene SOA mit Aromaten als Vorläufersubstanzen, Sättigungsdampfdruck (bei 298 K): 1.6E-3 Pa, Nukleationsmode
VALK1J (SORGAM)	Anthropogene SOA mit Alkanen als Vorläufer, Akkumulationsmode
VALK1I (SORGAM)	Anthropogene SOA mit Alkanen als Vorläufer, Nukleationsmode
VOLE1J (SORGAM)	Anthropogene SOA mit Alkenen als Vorläufer, Akkumulationsmode
VOLE1I (SORGAM)	Anthropogene SOA mit Alkenen als Vorläufersubstanzen, Nukleationsmode
VAPI1J (SORGAM)	Biogene SOA mit α -Pinen als Vorläufersubstanzen, Akkumulationsmode, Sättigungsdampfdruck (bei 298 K): 4.0E-6
VAPI1I (SORGAM)	Biogene SOA mit α -Pinen als Vorläufersubstanzen, Nukleationsmode, Sättigungsdampfdruck (bei 298 K): 4.0E-6
VAPI2J (SORGAM)	Biogene SOA mit α -Pinen als Vorläufersubstanzen, Akkumulationsmode, Sättigungsdampfdruck (bei 298 K): 1.7E-4
VAPI2I (SORGAM)	Biogene SOA mit α -Pinen als Vorläufersubstanzen, Nukleationsmode, Sättigungsdampfdruck (bei 298 K): 1.7E-4
VLIM1J (SORGAM)	Biogene SOA mit Limonen als Vorläufersubstanzen, Akkumulationsmode Sättigungsdampfdruck (bei 298 K): 2.5E-5
VLIM1I (SORGAM)	Biogene SOA mit Limonen als Vorläufersubstanzen, Nukleationsmode, Sättigungsdampfdruck (bei 298 K): 2.5E-5
VLIM2J (SORGAM)	Biogene SOA mit Limonen als Vorläufersubstanzen, Akkumulationsmode, Sättigungsdampfdruck (bei 298 K): 1.2E-4
VLIM2I (SORGAM)	Biogene SOA mit Limonen als Vorläufersubstanzen, Nukleationsmode, Sättigungsdampfdruck (bei 298 K): 1.2E-4

Tab. 4: Übersicht der in den EURAD-SORGAM behandelten Aerosolklassen

Allerdings bleibt das Wissen über die Zusammensetzung organischer Aerosolpartikel unvollständig, da

- a) die Analyse einzelner organischer Substanzen sehr aufwändig ist (Hildemann et al., 1993)
- b) für viele atmosphärische organische Substanzen geeignete Referenzspektren für die Gaschromatographie fehlen (Hoffmann et al., 1997; Turpin et al., 2000)
- c) in kleinen Konzentrationen vorliegende Substanzen mit polaren, d.h. ein Dipolmoment aufweisenden funktionellen Gruppen im Chromatographen häufig absorbiert und somit nicht analysiert werden können (Saxena et al., 1996)
- d) eine alternative Umwandlung polarer in unpolare Substanzen eine Festlegung verlangt, welche Substanz analysiert werden soll und so zur Nichterkennung unerwarteter Substanzen führt (Turpin et al., 2000) und
- e) statt klar identifizierbarer, schmaler Spitzen sich im Spektrum des Gaschromatographen häufig nur breite Verteilungen finden, die als Indiz gewertet werden, dass viele Substanzen mit gleichen funktionellen Gruppen und unterschiedlich langen Kohlenstoffketten vorliegen (Decesari et al., 2001).

Angesichts der mehr als 1000 verschiedenen, gleichzeitig beobachteten organischen Substanzen an einzelnen Standorten (Pio et al., 2001) schlagen Fuzzi et al. (2001) die Proton-Nuclear-Magnetic-Resonanz-Methode (HNMR) zur Analyse des Vorhandenseins bestimmter funktioneller Gruppen vor. Diese Methode kann ca. 90 % der Masse wasserlöslichen organischen Kohlenstoffs zuordnen, es sind aber dafür keine Einzelsubstanzen mehr unterscheidbar. Diese Vielzahl messtechnischer Probleme führt dazu, dass je nach Messung nur zwischen 10 bis 50 % der Masse des organischen Kohlenstoffs identifiziert werden können (Forstner et al., 1997; Mazurek et al., 1997; Pio et al., 2001; Radzi Bin Abas et al., 1996; Saxena et al., 1996; Turpin et al., 2000; Wang et al., 2002).

Unter primären organischen Substanzen werden in EURAD eine Vielzahl von Quellen im Nukleations- und Akkumulationsmode zusammengefasst: Abrieb von Reifen und Straßen, Kfz-Emissionen, Emissionen von Lacken oder Lösungsmitteln, Verbrennungsprozesse, Blattwachse, Blattharze, Sporen oder auch Pollen. In chemischen Analysen identifizierte primäre organische Substanzen sind v. a. Alkane, Alkanale, Alkanole, Fettsäuren, Fettalkohole und Dicarbonsäuren (Alves et al., 2001; Hahn et al., 1980; Kavaouras et al., 1999; Kendall et al., 2001; Kubatova et al., 2000; Limbeck et al., 1999; Pio et al., 2001; Saxena et al., 1995; Simoneit et al., 1996 und 2000; Yassaa et al., 2001). Es handelt sich meistens um langkettige und damit wasserunlösliche organische Moleküle.

Als Reaktionsprodukte von Aromaten werden v. a. Dicarbonsäuren und aus mehreren, aneinanderkondensierten Benzolringen bestehende Substanzen wie z.B. Anthracene oder Phenanthrene gefunden. Diese Substanzen sind teilweise wasserunlöslich.

Als Reaktionsprodukte von Alkanen wurden insbesondere kurzkettige d.h. weniger als 10 Kohlenstoffatome enthaltende Dicarbonsäuren (Kawamura et al., 1999), Alkanole und langkettige Alkanale mit weniger als 20 Kohlenstoffatomen (Pio et al., 2001) identifiziert, die mit zunehmender Langkettigkeit des Moleküls unpolar werden und damit wasserunlöslich sind. Allerdings sind die in mehreren Messungen als dominante Aerosolbestandteile gefundenen Dicarbonsäuren sehr gut wasserlöslich (Saxena et al., 1995), so dass diese Stoffgruppe mehrheitlich als wasserlöslich eingestuft wird.

Als Reaktionsprodukte von Alkenen wurden bisher wenige Aldehyde und organische Säuren identifiziert (Forstner et al., 1997; Lang et al., 2002; Seinfeld und Pandis, 1998; Tsapakis et al., 2002). Es gibt keine Aussagen, welche Substanzen dominieren.

Zur Identifizierung von Reaktionsprodukten des α -Pinen wurden insgesamt 9 Substanzen gefunden (Christoffersen et al., 1998; Jang et al., 1999; Kavouras et al., 1998 und 1999; Koch et al., 2000; O'Dowd et al., 2002; Pio et al., 2001; Warscheid et al., 2001), unter denen das Pinonaldehyd und die wasserlöslichen Substanzen Pinonsäure und Pinsäure dominieren (Kavouras et al., 1998; Warscheid et al., 2001).

Als Reaktionsprodukt von Limonen findet sich v. a. die Limonensäure (Saxena et al., 1995; Koch et al., 2000), die als Dicarbonsäure sehr gut wasserlöslich ist. Weitere Substanzen wurden bisher nicht identifiziert.

Das EURAD-Modell behandelt Rußaerosole als Emission von elementarem Kohlenstoff unter Annahme industrieller und verkehrsbedingter Quellen. Rußaerosole aus der Biomasseverbrennung werden bisher nicht beachtet, da diese sehr variable Quelle in Datenbanken nicht enthalten ist.

Des Weiteren gibt es eine Klasse ‚Sonstiges‘, die im Nukleations- und Akkumulationsmode als primäres Feinaerosol und in der Grobmode als sonstiges anthropogenes Aerosol bezeichnet wird. Es ist nicht genau bekannt, welche Substanzen diese Klasse enthält. Sie dient im Modell dem Ausgleich in der Massenbilanzierung im Vergleich zu Bodenmessungen der Partikelmasse.

Maritime und mineralische Aerosole sind im verwendeten EURAD-Datensatz bisher nicht enthalten. Eine entsprechende Erweiterung wird jedoch derzeit vorbereitet.

Gegenüberstellung von SYNAER-Komponenten und EURAD-Aerosolklassen

Zum Vergleich von SYNAER mit EURAD muss eine Abbildungsmatrix aufgestellt werden. Sie basiert auf folgenden Kriterien:

- Beschreibung von Quellen der OPAC-Komponenten in Hess et al. (1998)
- Beschreibung von Quellen in EURAD-MADE und EURAD-SORGAM (Ackermann, 1995; Schell, 2000)
- Messungen der Wasserlöslichkeit in der Literatur
- Analyse der chemischen Zusammensetzung (Anhang C)
- Vergleichbare Größenverteilungen in EURAD und OPAC
- Übereinstimmung des Brechungsindex aufgrund der chemischen Zusammensetzung mit den OPAC-Komponenten

Während in den beiden vorherigen Abschnitten die einzelnen Aerosolklassen anhand dieser Kriterien beschrieben wurden, gibt Tab. 5 eine Übersicht über die Vergleichbarkeit und damit die im Beobachtungsoperator gewählte Zuordnung von SYNAER-Komponenten und EURAD-Klassen.

EURAD Aerosolkategorie	SYNAER/OPAC Komponente
Schwefelsäure	wasserlöslich (WASO)
Ammoniumsulfat	wasserlöslich (WASO)
Ammoniumnitrat	wasserlöslich (WASO)
Salpetersäure	wasserlöslich (WASO)
primär organisch	wasserunlöslich (INSO und INSL)
Reaktionsprodukte der Aromate	wasserlöslich (WASO)
Reaktionsprodukte der Alkane	wasserlöslich (WASO)
Reaktionsprodukte der Alkene	wasserlöslich (WASO)
Reaktionsprodukte der α -Pine	wasserlöslich (WASO)
Reaktionsprodukte der Limonen	wasserlöslich (WASO)
Elementarer Kohlenstoff	industrieller Ruß (SOOT bzw. DISO), außerhalb Europas industrieller und aus Biomasseverbrennung stammender Ruß (SOOT bzw. BISO)
primäres Feinaerosol	wasserunlöslich (INSO und INSL)
maritim (in Vorbereitung)	Seesalzaerosol (SSAM und SSCM)
mineralischer Wüstenstaub (in Vorbereitung)	transportiertes mineralisches Aerosol (MITR und MILO)
Sonstiges anthropogenes Aerosol	wasserunlöslich (INSO und INSL)

Tab. 5: Abbildung von EURAD-Klassen auf SYNAER-Komponenten

3.3 Bestimmung der Extinktionseffizienz im EURAD-Modell

Für die komponentenweise Assimilation müssen die AOD des EURAD-Modells und damit die Q_{ext} der einzelnen Komponenten getrennt bestimmt werden.

Explizite Bestimmung der Extinktionseffizienz

Die Mie-Theorie (Mie, 1908) behandelt die Lösung der Maxwell-Gleichungen für die Interaktion einer elektromagnetischen Welle der Wellenlänge λ mit einem sphärischen Partikel und bestimmt Q_{ext} analytisch. Das Partikel wird dabei durch seinen Radius r und den komplexen Brechungsindex m charakterisiert.

Im Rahmen dieser Arbeit wird zur expliziten Berechnung von Q_{ext} das an der Universität München entwickelte MIEM (Mie-Modell München, Quenzel und Müller, 1987) eingesetzt. MIEM liefert für gegebene m und R_m neben β_{ext} auch den Streu- und den Absorptionskoeffizienten, die Einfachstreueralbedo, den Asymmetrieparameter und die Volumenphasenfunktion.

Die explizite Auswertung des als Reihenentwicklungen in Riccati-Bessel-Funktionen und assoziierten Legendre-Polynomen ausgedrückten Q_{ext} ist jedoch rechenzeitaufwendig. Im EURAD-Modellgitter N0 für Europa mit einer Gitterweite von 125 km und 23 Vertikal-schichten müssten bis zu 25000 Q_{ext} -Berechnungen von jeweils bis zu einer Minute Dauer durchgeführt werden. Daher wurden im Rahmen dieser Arbeit explizite Mie-Rechnungen nur für Sensitivitätsstudien eingesetzt.

Parametrisierte Bestimmung der Extinktionseffizienz

Für den Beobachtungsoperator wurde eine Parametrisierung der Mie-Theorie (Evans und Fournier, 1990) implementiert. Diese semi-empirische Parametrisierung beschreibt Q_{ext} als Funktion des Größenparameters x und m . Der Größenparameter x ist definiert als

$$x = \frac{2\pi r}{\lambda} \quad (20)$$

Die Evans-Fournier-Parametrisierung geht von der für kleine Partikel geltenden Rayleigh-Approximation (z. B. Van de Hulst, 1957) aus und beschreibt mit Hilfe von Korrekturtermen den Übergang zu größeren Partikeln. Die Rayleigh-Approximation der Extinktionseffizienz Q_r für ein sphärisches Partikel lautet

$$Q_r = -\text{Im} \left\{ 4 \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} x + \left[\frac{4}{15} \left(\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right)^2 \frac{m^4 + 27m^2 + 38}{2m^2 + 3} \right] x^3 \right\} \\ + \text{Re} \left[\frac{8}{3} \left(\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right)^2 \right] x^4 + \dots \quad (21)$$

Ebenfalls in Van de Hulst (1957) bereits beschrieben worden ist die Approximation der Extinktionseffizienz Q_v für sehr große Partikel

$$Q_v = 4 \text{Re} \left(\frac{\omega}{3} - \frac{\omega^2}{8} + \frac{\omega^3}{30} - \frac{\omega^4}{144} + \dots \right) \quad (22)$$

mit $\omega = 2kx + i 2x(n-1)$ auf. Q_r und Q_v werden verknüpft mit Hilfe der beiden von x abhängigen Korrekturparameter T und μ

$$T = 2 - \exp(-x^{-2/3}) \\ \mu = \alpha + \frac{\gamma}{x} \quad (23)$$

zu folgender Beziehung

$$Q_{ext, approx.} = \frac{Q_r}{\left[1 + \left(\frac{Q_r}{Q_v T} \right)^\mu \right]^{1/\mu}} \quad (24)$$

Dieser Ansatz wurde aus einer Reihe von verschiedenen Formulierungen empirisch ausgewählt. Die Funktion μ enthält die aus expliziten Mie-Berechnungen empirisch bestimmten Parameter α und γ

$$\begin{aligned}
\alpha &= \frac{1}{2} + \left[(n-1) - \frac{2}{3}\sqrt{k} - \frac{k}{2} \right] + \left[(n-1) + \frac{2}{3}(\sqrt{k} - 5k) \right]^2 \\
\gamma &= \left[\frac{3}{5} - \frac{3}{4}(n-1)^{1/2} + 3(n-1)^4 \right] + \frac{5}{\frac{6}{5} + \frac{(n-1)}{k}}
\end{aligned} \tag{25}$$

Die Gültigkeit dieser Parametrisierung wurde laut Evans und Fournier für alle x und für n zwischen 1.01 und 2.0 und k zwischen 0 und 10 mit expliziten Mie-Rechnungen verifiziert. Dabei wurden für Q_{ext} eines einzelnen Partikels Abweichungen von maximal 10 – 15 % für den Wertebereich der in EURAD vorkommenden m festgestellt. Für gesamte Partikelpopulationen erniedrigt sich die Abweichung auf weniger als 1 %. Im Vergleich mit dem z.B. durch Annahmen von m verursachten AOD-Fehler (s. Kap. 3.5) erscheint dieser Fehler der Mie-Parametrisierung als vernachlässigbar klein.

Mit Hilfe dieser Parametrisierung kann die Rechenzeit pro Assimilationslauf auf 10 – 15 Minuten reduziert werden.

3.4 SYNAER-äquivalente Größenverteilung in EURAD

Für die Berechnung von β_{ext} wird neben m und Q_{ext} auch die Größenverteilung benötigt. EURAD und SYNAER behandeln die Aerosolgrößenverteilung in drei verschiedenen Moden (Nukleations-, Akkumulations- und Grobmode) mit jeweils einer eigenen Größenverteilung. Die Breite der Größenverteilung (1.7, 2.0 und 2.2 μm für Nukleations-, Akkumulations- und Grobmode) wird während des Modelllaufs zeitlich konstant gehalten, der mittlere Modendurchmesser D_m wird jedoch z.B. durch Koagulation oder Sedimentation verändert. Typische EURAD-Startwerte für D_m sind 0.01, 0.07 und 1 μm für die Nukleations-, die Akkumulations- und die Grobmode. SYNAER dagegen verwendet die statischen OPAC-Größenverteilungen der einzelnen Komponenten (Abb. 8, zusammen mit den EURAD-Startwerten). Somit liefert SYNAER nur eine implizite und raum-zeitlich statische Information über die vorliegende Größenverteilung in einer Komponente. Daher wird die Größenverteilung nicht als ein in der Assimilation zu optimierender Parameter behandelt.

In Modell und Beobachtung liegen zumeist unterschiedliche Größenverteilungen vor. Es stellt sich nun die Frage, wie sensitiv die β_{ext} -Bestimmung bzgl. einer Variation der Größenverteilung der Partikel ist. In dieser Analyse wird β_{ext} nur bei 550 nm als der Normierungswellenlänge der AOD-Beobachtungen berücksichtigt. Die weiteren in der Beobachtung genutzten Wellenlängen werden nur implizit durch die komponentenweise Assimilation verwendet. Für diese Normierungswellenlänge wurden Mie-Rechnungen für verschiedene Aerosolkomponenten mit jeweils variablen D_m durchgeführt. Als ein typisches Ergebnis wird die Variation der Größenverteilung der Aerosolkomponente INSO dargestellt.

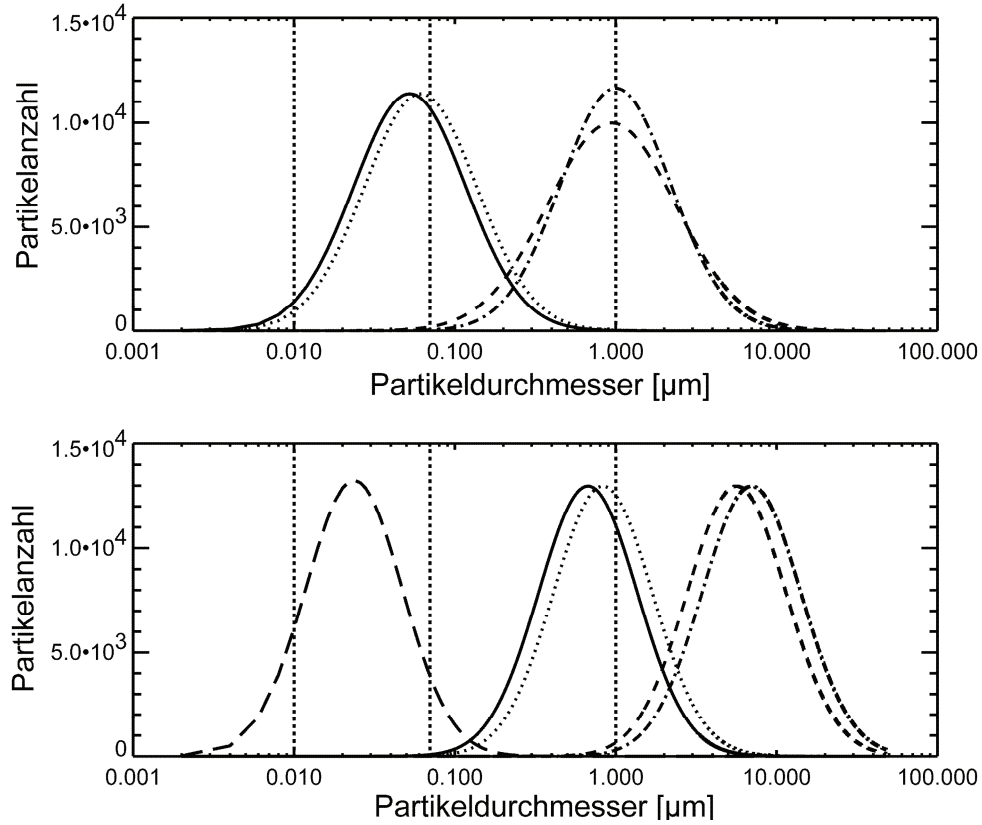


Abb. 8: In OPAC beschriebene Größenverteilungen der Aerosolkomponenten
 Im oberen Bild sind die Aerosolkomponenten WASO (50 % rel. Luftfeuchte RH, durchgezogene Linie; 80 % RH, Punktlinie), INSO (gestrichelte Linie) und MITR (Striche und Punkte im Wechsel) mit $N = 10^4$ dargestellt. Das untere Bild zeigt die Aerosolkomponenten SSAM (50 % RH, durchgezogene Linie; 80 % RH, Punktlinie), SSCM (50 % RH, gestrichelte Linie; 80 % RH, Striche und Punkte im Wechsel) und SOOT (lang gestrichelte Linie). Zusätzlich sind für das EURAD-Modell die Startwerte des Modendurchmessers der Nukleations-, Akkumulations- und Grobmode bei 0.01, 0.07 und 1 μm als vertikale Linien markiert.

INSO hat mit $R_m = 0.472 \mu\text{m}$ einen der Parametrisierung in EURAD entsprechenden $D_m = 0.942 \mu\text{m}$. Dieser wurde für diese Sensitivitätsanalyse in den Stufen 0.01, 0.05, 0.1, 0.2, 0.3, 0.5 und 1.0 μm variiert. Diese Wahl von kleineren D_m ist motiviert durch die in EURAD im Akkumulationsmode modellierten primären organischen Substanzen, die aus chemischer Sicht zur mit großen Partikeln beschriebenen Komponente INSO gehören. Für $D_m = 0.1 \mu\text{m}$ wurde eine Gesamtzahl $N_{0.1\mu\text{m}} = 50\,000$ Partikeln angenommen. $N_{0.1\mu\text{m}}$ wurde so gewählt, dass für den gesamten Variationsbereich von D_m ein auch in der Natur realistischer Wertebereich von β_{ext} bis zu maximal 1.5 km^{-1} erreicht wird. Die Partikelgesamtzahl N_i der einzelnen Variationsschritte wird unter Beachtung der Massenkonzanz der Aerosolpopulation, d.h. dem Gleichsetzen der Partikelvolumina und damit der dritten Momente von ursprünglicher und variierte Größenverteilung, bestimmt:

$$N_i = N_{0.1\mu\text{m}} \frac{(0.1\mu\text{m})^3}{(D_{m,i})^3} \quad (26)$$

β_{ext} wächst bis zu $D_m = 0.1 \mu\text{m}$ stark von unter 0.1 auf 1.5 km^{-1} an und sinkt anschließend wieder auf 0.25 km^{-1} für weiter ansteigende D_m bis zu 1 μm (Abb. 9). Werden die Größenverteilungen bei der Partikelgröße von 0.55 μm , d.h. der untersuchten Wellenlänge ausge-

wertet, so findet sich ein vergleichbarer Verlauf der Partikelzahlen. Während ein $D_m = 0.01 \mu\text{m}$ einer Partikelanzahl von ca. 3 im betrachteten Größenbereich entspricht, steigt dieser Wert auf ca. 2500 Partikel für $D_m = 0.1 \mu\text{m}$ an. Für noch größere D_m sinkt er wieder ab bis auf ca. 360 Partikeln bei $D_m = 1.0 \mu\text{m}$. Die Anzahl der optisch relevanten Partikel mit einer der betrachteten Wellenlänge vergleichbaren Partikelgröße entspricht dem Verlauf von β_{ext} .

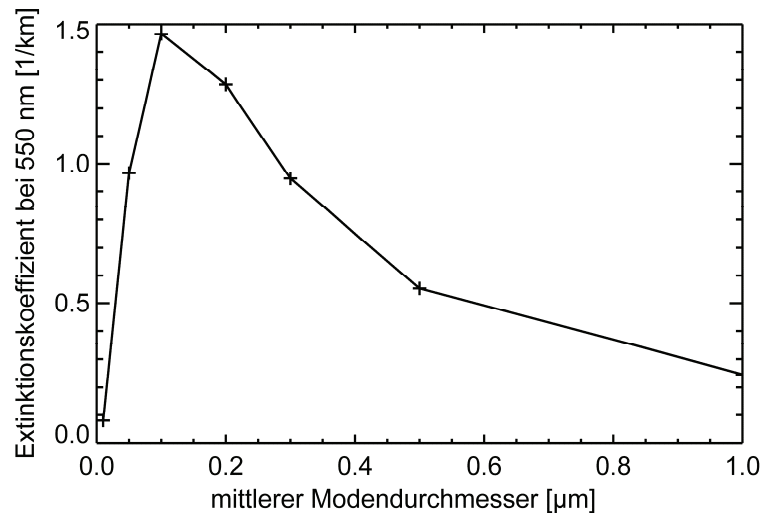


Abb. 9: Sensitivität des Extinktionskoeffizienten bzgl. des Modendurchmessers
Variation als Funktion des mittleren Modendurchmessers der Größenverteilung am Beispiel einer Aerosolpopulation von 50 000 Partikeln bei $D_m = 0.1 \mu\text{m}$ und den optischen Eigenschaften der Aerosolkomponente INSO.

Motiviert durch die hohe Sensitivität von β_{ext} als Funktion der Größenverteilung wird für den AOD-Vergleich von EURAD und SYNAER eine Umrechnung der Modell-Größenverteilung in eine äquivalente SYNAER-Größenverteilung vorgeschlagen. Dies ist allerdings nur zulässig, wenn diese Umrechnung wie im vorgeschlagenen Assimilationsverfahren aerosoltypweise durchgeführt wird.

Die Massenkonzanz der Aerosolpopulation muß gewährleistet werden. Für eine Größenverteilung mit einer Gesamtpartikelzahl N_{EURAD} , einer Modenbreite $\sigma_{m,EURAD}$ und dem mittleren Modendurchmesser $D_{m,EURAD}$ kann die äquivalente Partikelanzahl N_{OPAC} für eine OPAC-Komponente mit einer Modenbreite $\sigma_{m,OPAC}$ und einem mittleren Modendurchmesser $D_{m,OPAC}$ durch das Gleichsetzen der dritten Momente der Verteilung nach Gl. (12) bestimmt werden

$$N_{OPAC} = \frac{N_{EURAD} D_{m,EURAD}^3 \exp\left[\frac{9}{2} (\ln \sigma_{m,EURAD})^2\right]}{D_{m,OPAC}^3 \exp\left[\frac{9}{2} (\ln \sigma_{m,OPAC})^2\right]} \quad (27)$$

In Kap. 5.1 wird der Einfluss dieser Konversion anhand konkreter Fallbeispiele untersucht.

3.5 Optische Eigenschaften der EURAD-Aerosolklassen

Sensitivitätsanalyse

Zur β_{ext} -Bestimmung muss m des aktuell betrachteten Partikels in Abhängigkeit seiner chemischen Zusammensetzung bekannt sein. Da diese sehr variabel und oft nur ungenau

bekannt ist, stellt sich zunächst die Frage, wie exakt n und k bekannt sein müssen, um eine akzeptable Genauigkeit von β_{ext} zu gewährleisten.

Abb. 10 zeigt das in Mie-Rechnungen bestimmte $\beta_{ext,550nm}$ für ein nicht-absorbierendes Aerosol ($k = 0.0$) und einem im typischen Wertebereich atmosphärischer Aerosole variierten n von 1.3 bis 1.8. Für diese Analyse wurde ein $D_m = 0.1 \mu m$, ein $\sigma_m = 2 \mu m$ und $N = 10^6$ angenommen. Neben den Simulationsergebnissen (durchgezogene Linie) sind zusätzliche Hilfslinien für einen um 0.025 und 0.05 km^{-1} abweichendes β_{ext} (Punktlinie und Strichpunkt-Linie) gezeichnet. Diese entsprechen bei der Annahme einer 2 km dicken Aerosolschicht einer AOD-Variation von 0.05 und 0.1 . Der RMSE in der AOD-Satellitenmessung beträgt derzeit im besten Falle 0.1 (s. Kap. 4.3).

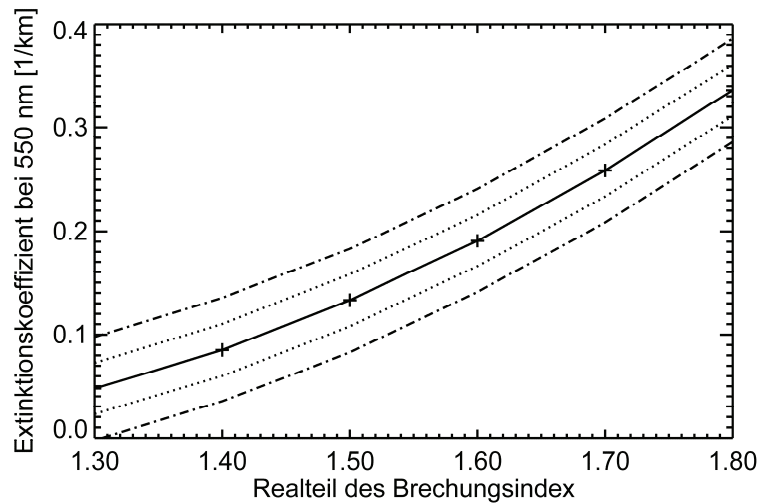


Abb. 10: $\beta_{ext,550nm}$ als Funktion des Realteils des Brechungsindex
Variationen von β_{ext} um 0.025 und 0.05 km^{-1} sind als Hilfslinien eingezeichnet.

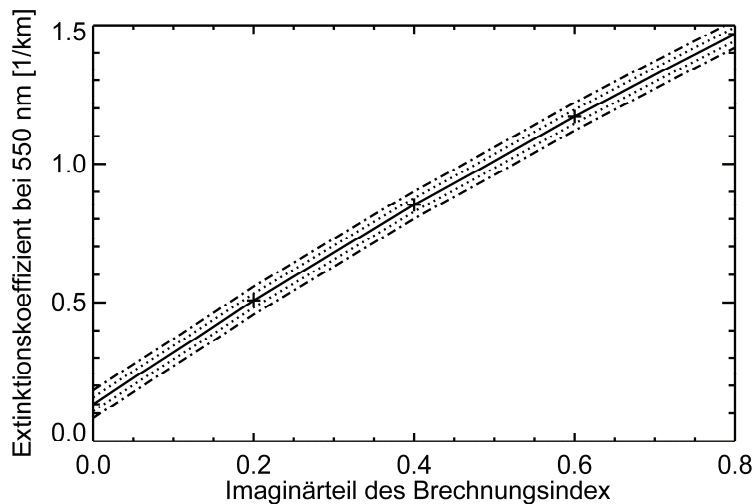


Abb. 11: $\beta_{ext,550nm}$ als Funktion des Imaginärteils des Brechungsindex
Variationen von β_{ext} um 0.025 und 0.05 km^{-1} sind als Hilfslinien eingezeichnet.

Abb. 11 zeigt die vergleichbare Analyse für eine k -Variation. Hierfür wurde ein durchschnittlich streuendes Aerosol ($n = 1.5$), dieselbe Größenverteilung und eine Variation im Bereich der für die Atmosphäre typischen Werte von $k = 0.0$ bis 0.8 in Schritten von 0.2 angenommen. Neben den Simulationsergebnissen (durchgezogene Linie) sind zusätzliche Hilfslinien für einen um 0.025 und 0.05 km^{-1} abweichendes β_{ext} (Punktlinie und Strichpunktlinie) eingezeichnet.

Anhand der Variation in β_{ext} um 0.05 km^{-1} lässt sich erkennen, dass n mit einer Genauigkeit von 0.1 oder besser bekannt sein sollte. Der Imaginärteil dagegen sollte mit einer wesentlich höheren Genauigkeit von ca. 0.03 bekannt sein. Nur dann bleibt der AOD-Fehler durch ein nur ungenau bekanntes m kleiner als der derzeitige Beobachtungsfehler.

Brechungsindex der EURAD-Klassen

Für die Substanzen Schwefelsäure, Ammoniumsulfat, Ammoniumnitrat, Salpetersäure und Wasser liegen in der Literatur Messwerte für m zusammen mit einer Fehlerangabe von 1% der Messgenauigkeit vor (Lide, 1999; Palmer and Williams, 1974; Sloane, 1984; Toon, 1976, Tab. 6).

Für die chemisch nicht näher spezifizierte Klasse der primären organischen Aerosole wurden in einer Literaturrecherche insgesamt 120 chemische Substanzen identifiziert (s. Anhang C). In Verzeichnissen physikalischer und chemischer Eigenschaften (z. B. Buckingham, 1984 und Lide, 1999) finden sich jedoch nur für 61 dieser Substanzen Angaben für m . Lide (1999) schreibt dazu, dass die Bestimmung von Brechungsindex-Werten chemischer Substanzen vor dem Aufkommen moderner Analyseverfahren wie z.B. der Gaschromatographie üblich und notwendig war, da damals das Vorhandensein bestimmter chemischer Substanzen u. a. mit Hilfe der Brechungsindexanalyse bestimmt wurde. Gleichzeitig sind aber viele organische Substanzen überhaupt erst in der modernen Chemie identifiziert worden. Daher ist für organische Substanzen oftmals kein m bekannt und oftmals fehlen auch Informationen über die relative Luftfeuchte der Umgebungsluft und damit des Quellungs Zustands der Substanz während der Messung. Für die vorhandenen 61 Werte ergibt sich ein Mittelwert von $n = 1.43$ mit einer Standardabweichung von 0.02 (Abb. 12). Der Imaginärteil beträgt bei allen Substanzen 0.0 (Horvath, 1993; Lide, 1999). Diese Standardabweichung ist deutlich kleiner als die angestrebte Brechungsindex-Genauigkeit und kann somit akzeptiert werden.

Für die Reaktionsprodukte der Aromate konnten in der Literatur 60 verschiedene sekundäre organische Substanzen identifiziert werden (s. Anhang C), Brechungsindexwerte liegen jedoch nur für 7 von diesen vor (z. B. Lide, 1999). Der Mittelwert liegt bei $n = 1.55$ mit einer Standardabweichung von 0.03 . Die Substanzen sind nicht absorbierend, d.h. der Imaginärteil beträgt 0.0 .

Für die Reaktionsprodukte der Alkane konnten 30 verschiedene sekundäre organische Substanzen identifiziert werden. Für 9 davon liegen Brechungsindexwerte vor (ebenfalls z.B. Lide, 1999). Diese haben einen Mittelwert von $n = 1.43$ bei einer Standardabweichung von 0.01 und $k = 0.0$ für alle Substanzen.

Für die Reaktionsprodukte der Alkene wurden 11 sekundäre organische Substanzen identifiziert, für 6 aus dieser Liste sind Brechungsindexwerte bekannt (z.B. Lide, 1999). Diese haben einen Mittelwert von $n = 1.45$ bei einer Standardabweichung von 0.03 , der somit ebenfalls als ausreichend genau bekannt beurteilt werden kann.

Für die Reaktionsprodukte der α -Pine sind insgesamt 9 Substanzen bekannt. Da diese Reaktionsprodukte erst kürzlich identifiziert wurden (z.B. Warscheid und Hoffmann, 2001),

liegen keine Informationen über den Brechungsindex vor. Aus einem Vergleich der Reaktionsprodukte von Alkanen, Alkenen und Aromaten lässt sich jedoch eine deutliche Trennung in zwei Gruppen mit und ohne die für die Aromate übliche chemische Ringstruktur feststellen. Während die Reaktionsprodukte der Alkane und Alkene ein mittleres $n = 1.43$ aufweisen, haben die Reaktionsprodukte der Aromate bedingt durch ihren prinzipiell anderen chemischen Ringstrukturaufbau ein mittleres $n = 1.55$ (Abb. 12). Daher werden die für die Reaktionsprodukte der Aromate ermittelten Werte auch für die zur Gruppe der Aromaten-Derivate gehörenden Reaktionsprodukte der α -Pine angenommen.

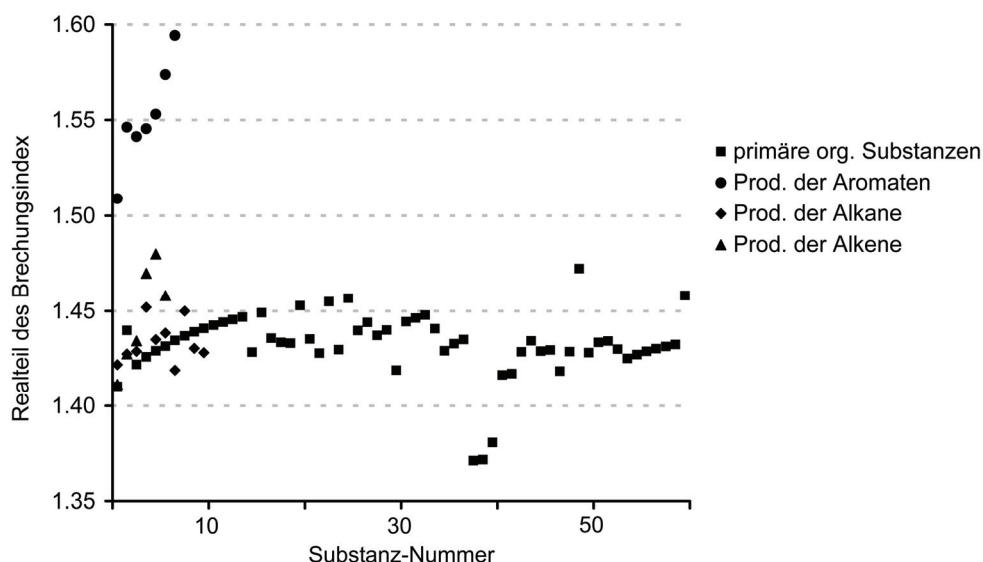


Abb. 12: Realteil des Brechungsindex für organische Substanzen

Die Substanzen der verschiedenen EURAD-Klassen sind mit verschiedenen Symbolen gekennzeichnet („primäre organische Substanzen“ mit ■, „Reaktionsprodukte der Alkane“ mit ♦, „Reaktionsprodukte der Alkene“ mit ▲ und „Reaktionsprodukte der Aromate“ mit ●)

Entsprechendes gilt auch für die Klasse der Reaktionsprodukte der Limone, für die in der Literatur bisher nur die Substanz Limonensäure identifiziert wurde. Da auch diese Substanz zu den Derivaten der Aromate gehört, wird ebenfalls der Brechungsindex der ‚Reaktionsprodukte der Aromate‘ angenommen.

Für den elementaren Kohlenstoff wird derzeit $m = 1.75 + 0.44i$ aus OPAC genutzt. Alternativ könnte in Europa auch der von Schnaiter et al. (2003) mit einer Genauigkeit von 10 % bei 550 nm bestimmte $m = 1.49 + 0.67i$ für Dieselruß verwendet werden. In Kap. 4.6 wird gezeigt, dass in der jetzigen Modellversion nur sehr kleine Konzentrationen des elementaren Kohlenstoffs auftreten. Die Sensitivität bzgl. einer optimalen Wahl des Brechungsindex ist daher klein und eine Validierung anhand von Beobachtungsdaten unmöglich. Es sollte zunächst angestrebt werden, das Problem der zu kleinen Werte des elementaren Kohlenstoffs im Modell z.B. durch aktualisierte Emissionsdatenbanken zu lösen. Danach kann die Auswahl des in Europa repräsentativen m mit Hilfe einer AOD-Validierung erfolgen.

Für das primäre Feinaerosol ist die Festlegung von m nahezu unmöglich, da für diese Klasse lediglich angenommen wird, dass die Emission primärer Partikel neben elementarem und organischem Kohlenstoff eine Gruppe nicht näher bekannter Substanzen enthält. Entsprechend Kap. 3.2 wird das primäre Feinaerosol dem INSO zugeordnet. Hess et al. (1998) geben zwar eine Messgenauigkeit von 1 % für die der OPAC-Datenbank zugrunde liegenden

Partikelmessungen an, dieser Wert erscheint jedoch als zu gering da unklar bleiben muss, ob INSO überhaupt mit dem in EURAD als ‚nicht identifiziert‘ klassifiziertem primären Feinaerosol übereinstimmt. Auch das „sonstige anthropogene Aerosol“ im Grobmode besteht aus nicht-identifizierbaren Partikeln. Analog zum primären Feinaerosol wird das m der INSO-Komponente genutzt. Zukünftig sollen im EURAD-Modell auch die Klassen maritime Aerosole und transportierte Wüstenaerosole implementiert werden. Da hier noch keine näheren Details der Modellierung bekannt sind, werden zunächst die Brechungsindexwerte der OPAC-Komponenten Seesalz und des transportierten Wüstenstaubs angenommen.

EURAD Aerosolkategorie	Brechungsindex	Bemerkung
Schwefelsäure	$1.443 + i\,0.0$	1 % Messgenauigkeit (Palmer and Williams, 1975)
Ammoniumsulfat	$1.53 + i\,10^{-7}$	1 % Messgenauigkeit (Toon, 1976)
Ammoniumnitrat	$1.53 + i\,0.0$	1 % Messgenauigkeit (Sloane, 1984)
Salpetersäure	$1.393 + i\,0.0$	1 % Messgenauigkeit (Lide, 1999)
Wasser	$1.333 + i\,1.96\,10^{-9}$	1 % Messgenauigkeit (Palmer and Williams, 1975)
primär organisch	$1.43 + i\,0.0$	Mittel von 61 Substanzen mit $\sigma = 0.02 + i\,0.0$
Produkte der Aromate	$1.55 + i\,0.0$	Mittel von 7 Substanzen mit $\sigma = 0.03 + i\,0.0$
Produkte der Alkane	$1.43 + i\,0.0$	Mittel von 9 Substanzen mit $\sigma = 0.01 + i\,0.0$
Produkte der Alkene	$1.45 + i\,0.0$	Mittel von 6 Substanzen mit $\sigma = 0.03 + i\,0.0$
Produkte der α -Pine	$1.55 + i\,0.0$	Werte der Reaktionsprodukte der Aromate angenommen
Produkte der Limonen	$1.55 + i\,0.0$	Werte der Reaktionsprodukte der Aromate angenommen
elementarer Kohlenstoff	$1.75 + i\,0.44$	Werte der OPAC-Komponente SOOT angenommen
primäres Feinaerosol	$1.53 + i\,0.08$	Werte der OPAC-Komponenten INSO angenommen
sonstiges anthropogenes Aerosol	$1.53 + i\,0.08$	Werte der OPAC-Komponenten INSO angenommen
maritim *	$1.5 + i\,10^{-8}$	Werte der OPAC-Komponenten SSAM angenommen
mineralischer Wüstenstaub *	$1.53 + i\,0.0055$	Werte der OPAC-Komponenten transportiertes mineralisches Aerosol (MITR)

Tab. 6: Komplexer Brechungsindex für alle EURAD-Aerosolklassen
(mit * gekennzeichnete EURAD-Aerosolklassen werden derzeit implementiert und getestet)

Die Zuordnung der EURAD-Aerosolklassen zu den OPAC-Aerosolkomponenten (Tab. 5) liegt damit vor.

Sie erfordert die Berechnung von m für eine Aerosolmischung. So werden z.B. in der Komponente WASO die EURAD-Aerosolklassen der inorganischen Säuren mit den sekundären organischen Substanzen zusammengefasst. Das EURAD-Modell nimmt generell an, dass innerhalb einer Größenmode eine interne Mischung vorliegt. Daher wird der Gesamtbrechungsindex als ein mit den Volumenanteilen der chemischen Komponenten gewichtetes Mittel der Brechungsindexwerte nach Gl. (7) bestimmt.

3.6 Bestimmung der aerosoloptischen Dicke im EURAD-Modell

Mit der SYNAER-äquivalenten Größenverteilung, dem Brechungsindex und der in Kap. 3.3 beschriebenen Parametrisierung kann nun Q_{ext} , C_{ext} nach Gl. (3) und $\beta_{ext,550nm}$ nach Gl. (5) ausgewertet werden. Dieses muss für jede EURAD-Komponente in jeder beteiligten Größenverteilungs-Mode separat durchgeführt werden. Danach werden β_{ext} einer in verschiedenen Moden vorkommenden EURAD-Komponente aufsummiert.

Die EURAD-Aerosolklassen im Nukleationsmode werden nicht berücksichtigt, da diese sehr kleinen Partikel vom Satelliten durch ihre sehr geringe optische Wirkung im sichtbaren Spektralbereich nicht detektiert werden können. Eine Ausnahme bildet der elementare Kohlenstoff, da im Modell 90 % der Emissionen dem Nukleationsmode zugeordnet werden.

Die AOD wird anschließend als vertikales Integral von β_{ext} nach Gl. (6) bis zur Integrationsobergrenze der in SYNAER (Tab. 1) angenommenen maximalen Höhe der Aerosolschicht von 6 km bestimmt. Für Grenzschichtaerosole erhöht dies zwar die Rechenzeit, es ermöglicht aber in Fällen großräumiger Transporte wie z. B. bei Wüstenstaubausbrüchen die Erfassung dieser in mehreren Kilometern Höhe auftretenden Aerosole. Die gesamte AOD_{TOTAL} ergibt sich aus

$$AOD_{TOTAL} = AOD_{WASO} + AOD_{INSO} + AOD_{SOOT} + AOD_{SEAS} + AOD_{MITR} \quad (28)$$

3.7 Der adjungierte H-Operator

Neben der Beschreibung des **H**-Operators zum Transfer aus dem Modell- in den Beobachtungsraum wird im Folgenden auch die transponierte Transformation, also vom Beobachtungs- in den Modellraum, benötigt. Die Änderung der einzelnen Komponenten WASO, SOOT und INSO durch den Assimilationsschritt kann linear unter Erhalt der vertikalen Profilstruktur in die einzelnen Modellschichten auf die Massenkonzentrationen der einzelnen Aerosolklassen des Modells übertragen werden. Dies ergibt sich aus Gl. (5), da C_{ext} nur von D und m abhängt und β_{ext} zusätzlich noch von N und der Größenverteilung.

Da sowohl die Größenverteilung als auch der Brechungsindex durch die Assimilation nicht verändert werden, ergibt sich eine lineare Beziehung für die Rücktransformation von β_{ext} auf die Partikelanzahl N und somit die x_{mass} . Nach Gl. (6) hängt auch die AOD linear von β_{ext} ab, da die Grenzen der einzelnen Vertikalschichten durch die Assimilation ebenfalls nicht verändert werden.

Zusammen kann somit für jede der j -ten Aerosolkomponente zugeordneten i -ten Aerosolkategorie des Modells (Tab. 5) die Massenkonzentration mk_i in Abhängigkeit von Hintergrund- und Analysefeld der AOD bestimmt werden:

$$mk_{i,Analyse} = g_j mk_{i,Hintergrund} \quad (29)$$

$$g_j = \frac{AOD_{Analyse,j}}{AOD_{Hintergrund,j}}$$

Das Verhältnis g_j beschreibt dabei das Verhältnis der AOD von Analyse- zu Hintergrundfeld. Es wird innerhalb einer Gittersäule als mit der Höhe konstant angenommen, da die Beobachtungen keine zusätzliche Information über die vertikale Profilstruktur liefern.

Für die zukünftig geplante Staub-Komponente sollte dagegen nur in der MITR-typischen Höhenschicht von 2-6 km des Modellfelds die Massenkonzentration angepasst werden, da nach Europa reichende Staubaussbrüche i.A. oberhalb der Grenzschicht liegen.

4 Die zweidimensionale variationelle Assimilation

Nach einer Übersicht (Kap. 4.1) über die zur Validierung verwendeten Bodenstationsmessungen und die Testdatensätze (Kap. 4.2) enthält Kap. 4.3 eine Validierung der Beobachtungen zur Bestimmung von **R**. Kap. 4.4 beschreibt eine automatische Qualitätskontrolle der Beobachtungen mit dem Ziel fehlerhafte Werte anhand von Zwischenergebnissen innerhalb der SYNAER-Methode zu erkennen. Kap. 4.5 behandelt die Validierung des Hintergrundfelds, während in Kap. 4.6 das Hintergrundfeld mit den Satellitenbeobachtungen verglichen wird. Kap. 4.7 beschäftigt sich mit der Realisierung der variationellen Assimilation. Kap. 4.8 behandelt abschließend die resultierende Statistik der Analyseinkremente.

4.1 Referenzmessungen verschiedener Bodenstationsnetzwerke

Optische Messungen des AERONET

Die Sonnenphotometer-Messungen des AERONET-Netzwerks (Holben et al., 1998; <http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>) liegen weltweit an ca. 200 Stationen vor. Durch eine Direktstrahlungsmessung wird die AOD für 340, 380, 440, 500, 670, 870, 940 und 1020 nm bestimmt. Die zeitliche Auflösung ist mit oftmals wenigen Minuten zwischen den Messungen sehr hoch. Für wolkenfreie Bedingungen wird eine Genauigkeit der AOD von $< \pm 0.01$ für Wellenlängen größer als 440 nm und $< \pm 0.02$ für kleinere Wellenlängen angegeben. Alle Instrumente werden automatisch betrieben und 90% der Messungen in naher Echtzeit als Level 1.5 Datensätze mit einer automatischen Elimination von durch Wolken gestörten Messungen bereitgestellt. Außerdem stehen nach einigen Wochen Level 2 Datensätze mit einer manuell überprüften Wolkenkorrektur zur Verfügung. Seit 1. Juli 2005 gibt es Version 2 mit einer verbesserten Beschreibung der absorbierenden Gase NO_2 und O_3 , einer Berücksichtigung der Spurengase H_2O , CO_2 und CH_4 im nahen Infrarot, einer exakteren Luftmassenkalkulation im Fall niedrig stehender Sonne und aktualisierten Filterfunktionen der Sonnenphotometer. Das AERONET wird seit dem Jahr 2000 aufgebaut - für die Fallbeispiele aus 1997 stehen daher keine raum-zeitlich passenden Messungen zur Verfügung.

Bodenmessungen der Massenkonzentration

Für die Validierung der Massenkonzentrationen im Rahmen dieser Arbeit genügen die standardmäßigen PM10 oder PM2.5-Messungen nicht, da insbesondere die typ-auflösende Assimilation untersucht werden soll. In Europa stehen für das untersuchte Jahr 2003 nur in-situ-Messungen des Rußgehalts in Großbritannien und der wasserlöslichen Komponenten

in Ungarn, Italien, Litauen, den Niederlanden, Norwegen, Polen, Russland und der Türkei zur Verfügung.

Die Station Melpitz des deutschen Instituts für Troposphärenforschung zeichnet sich durch eine Vielzahl spezialisierter Aerosolmessungen aus. Bedauerlicherweise konnten im Untersuchungszeitraum keine Koinzidenzen zwischen Satellitenbeobachtungen und Bodenmessungen gefunden werden, da die Station eine Datenlücke vom 13.2. – 8.10.2003 aufweist.

Das UK Smoke and Sulphur Dioxide Network

Das 'UK Smoke and Sulphur Dioxide Network' (Loader et al., 2003; <http://www.airquality.co.uk>) misst täglich an 137 in Großbritannien verteilten in-situ-Stationen die Konzentration des 'black smoke' in Aerosolpartikeln und den atmosphärischen Säuregehalt, ausgedrückt als SO_2 -Äquivalent in der Gasphase. Die Stationen sind in Ballungsräumen angesiedelt und repräsentieren den städtischen Hintergrund ('urban background or suburban') unter Vermeidung der direkten Nachbarschaft zu Emissionsquellen. Mit Hilfe eines Motors wird Luft mit konstantem Durchsatz angesaugt und durchströmt einen Whatman No. 1 – Zellulose-Filter (Butterfield et al, 2007). Diese Filter werden täglich um Mitternacht automatisch ausgetauscht und einmal wöchentlich in einem zentralen Labor mit einem Reflektometer mit einer Genauigkeit von 2% analysiert. Der Tagesmittelwert der Konzentration des 'black smoke index' wird als Funktion der Reflektometermessung und des analysierten Luftvolumens nach der 'British Standard Smoke Calibration Curve' bestimmt. Die Massenkonzentration des 'black smoke' entspricht weitestgehend der Massenkonzentration des elementaren Kohlenstoffs, da gegebenenfalls enthaltener organischer Kohlenstoff kaum zur Schwärze der Filterprobe beiträgt. Die Genauigkeit der Massenkonzentration reicht von 12% für hohe Konzentrationen bis zu $150 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bis zu 42% für kleine Konzentrationen von einigen $\mu\text{g}/\text{m}^3$ infolge des Fehlers in der Bestimmung des analysierten Luftvolumens von 7.7%. Für die in Großbritannien typischen Konzentrationen wird eine Messunsicherheit von ca. 30% angegeben.

Messungen des EMEP-Netzwerks

Im Rahmen des EMEP (Co-operative Programme for Monitoring and Evaluation of the Long-range Transmission of Air pollutants in Europe, <http://www.emep.int/>) Programms werden die Gasphase, die Partikelphase und die flüssige Phase des Niederschlags in der Atmosphäre chemisch überwacht. Flächendeckend werden in den 48 Ländern des EMEP-Netzwerks nur die PM_{10} und $\text{PM}_{2.5}$ -Konzentrationen der Aerosolpartikel gemessen – auch die deutschen Stationen messen nur diese Parameter. An 16 in-situ-Stationen in Ungarn, Italien, Litauen, den Niederlanden, Norwegen, Polen, Russland und der Türkei werden jedoch die in EURAD modellierten Substanzen SO_4 , NH_4 und NO_3 auch separat analysiert. Gemessen werden dabei Tagesmittelwerte des SO_4 in $\mu\text{g S}/\text{m}^3$ und von NH_4 und NO_3 in $\mu\text{g N}/\text{m}^3$. Dabei werden Aerosolpartikel eines angesaugten Luftvolumens auf einem basisch bzw. im sauren Milieu imprägnierten Filter gesammelt und anschließend mit Ionenchromatographie chemisch analysiert. Als Genauigkeitsanforderungen werden von EMEP 10% angegeben (EMEP, 2001). Verschiedene Stationen verwenden im Detail unterschiedliche Filtertypen und Imprägnierungsverfahren (s. u. <http://www.nilu.no/projects/ccc/site-descriptions/index.html>), die jedoch den EMEP-Anforderungen genügen müssen.

Die COST 633 – Datenbank

Eine weitere Datenbank für aerosoltyp-aufgelöste Bodenmessungen der Massenkonzentration wurde im Rahmen der COST 633-Aktion „Particulate Matter: Properties related to health effects“ (<http://www2.dmu.dk/atmosphericenvironment/COST633/default.asp>) aufgebaut. Der Schwerpunkt dieser Datenbank liegt auf Kampagnen-Messungen von z.B. SO₄, NH₄, NO₃, elementarem und organischem Kohlenstoff (EC, OC), einzelnen Schwermetallen, polyzyklischen Aromaten und der Partikelgrößenverteilung. Leider liegen für deutsche Stationen im ASSET-Zeitraum keine Messungen vor – in der Arbeit wurden Messungen aus spanischen Messkampagnen verwendet. Die Messmethoden sind denen des EMEP und des UK Black Smoke Netzwerks vergleichbar. Die Messunsicherheiten an den einzelnen Stationen werden nicht routinemäßig überwacht.

4.2 Testdatensätze

Für August 1997 – Juli 1998 wurden im Rahmen eines Forschungsprojekts Satellitenrohdaten für Tage mit kleinen GOME-Pixeln beschafft. Aus diesem Zeitraum wurden Testfälle am 5., 15. und 25.8., dem 25.9., dem 5., 15. und 25.10., dem 15.11. und dem 25.12.1997 nach folgenden Kriterien ausgewählt:

- Verfügbarkeit von mindestens einem ERS-2-Überflug mit kleiner Pixelgröße (80 x 40 km²) im EURAD-Modellgebiet
- eine möglichst geringe Wolkenbedeckung in Europa
- Vorhandensein von AERONET-Stationen in der Hoffnung, dass im Laufe der Zeit Bodenbeobachtungen zur Verfügung gestellt würden. Dies war jedoch für die europäischen Stationen nie gegeben.

EURAD wurde auf dem Modellgitter N0 (Europa, 125 km Auflösung) betrieben und die Modellfelder jeweils um 10 UTC ausgewertet. Für die Umwandlung von Massenkonzentrationen in AOD werden außerdem das Höhenmodell, die Geolokation der Gitterboxen und die vertikalen Schichtgrenzen des Modells benötigt.

Des Weiteren stand für statistische Analysen der sogenannte ‚ASSET-Datensatz‘ vom 1.7. – 30.11.2003 für Europa mit einer horizontalen Gitterauflösung von 56 km zur Verfügung. Dieser unterscheidet sich von den übrigen Testfällen in der Gitterauflösung und durch das Fehlen der sekundären organischen Aerosole. Als Beobachtungen wurden für den ASSET-Zeitraum SYNAER-ENVISAT-Messungen V1.0 mit einem Prozessierdatum bis zum 25.5.2006 und der V1.8 mit einem Prozessierdatum bis zum 7.2.2008 verwendet.

4.3 Validierung der Beobachtungen

Da die verwendeten Messungen von den zwei Satelliten ERS-2 und ENVISAT stammen, erfolgt die Validierung der Beobachtungen getrennt nach den Satelliten. Ein erster Vergleich des SYNAER-Verfahrens (Holzer-Popp et al., 2002b) für ERS-2 Messungen mit AERONET-Bodenmessungen ergab einen RMSE der AOD von 0.104 bei 440 nm und von 0.067 bei 670 nm. Verwendet wurden AERONET-Messungen innerhalb des Satellitenpixels, für die der Bewölkungsgrad des Pixels kleiner als 50% und deren Zeitabstand zum Überflug kleiner als 15 Minuten ist. Bodenstationen über 1500 m Stationshöhe oder mit sehr heller Bodenalbedo wurden ausgeschlossen. Infolge der sehr beschränkten Datenverfügbarkeit sowohl bei Boden- als auch Satellitenmessungen für 1997-1999 war der Vergleich auf 14 Koinzidenzen beschränkt.

Für das seit der Publikation von 2002 weiterentwickelte SYNAER-Verfahren wurde ein erneuter Vergleich von ERS-2 mit AERONET-Messungen (Version 1, Level 1.5) für denselben Zeitraum durchgeführt (Abb. 13 mit einer Hilfslinie bei ± 0.1). Fehlende AERONET-Messungen bei 550 nm wurden aus Messungen bei 440 und 670 nm linear interpoliert. Kriterien für die Auswahl von Vergleichspaaren waren eine Bodenmessung innerhalb des Pixels und ein Zeitabstand zwischen Überflug und Bodenmessung von maximal einer Stunde.

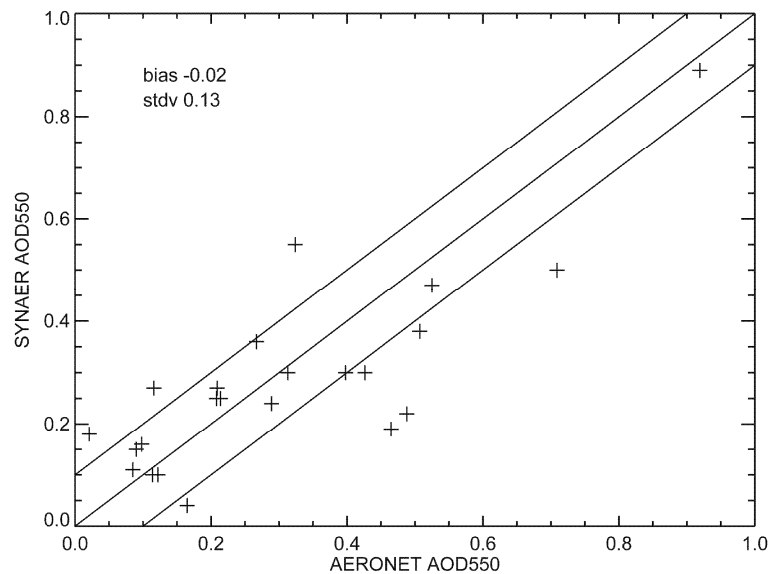


Abb. 13: Vergleich der $AOD_{SYNAER,ERS-2}$ bei 550 nm mit Bodenmessungen des AERONET-Netzwerks

Es ergeben sich 23 Vergleichsfälle mit einem systematischem Fehler $E_s = -0.02$ für $AOD_{SYNAER-AERONET}$, einer Standardabweichung der Differenzen $\sigma_{SYNAER-AERONET} = 0.13$ und einem Korrelationskoeffizienten von 0.81. Dies stellt eine Verbesserung im Vergleich zur SYNAER-Variante zum Stand der Publikation in 2002 dar. Diese ältere SYNAER-Variante ergibt für dieselben 23 Fälle einen systematischen Fehler $E_s = 0.1$, $\sigma_{SYNAER-AERONET} = 0.24$ und einen Korrelationskoeffizienten von 0.72.

Für den ENVISAT-Zeitraum steht AERONET in Version 2 zur Verfügung. Zur Quantifizierung der Unterschiede im sichtbaren Spektralbereich wurde die Validierung von ENVISAT-SYNAER V1.0 jeweils mit beiden AERONET Versionen (Level 2) für die Jahre 2003 und 2005 durchgeführt. Für die statistischen Kenngrößen ergeben sich vernachlässigbare Unterschiede in der 2. Nachkommastelle und die gleiche Anzahl von Validierungsfällen. Daher erscheinen beide Versionen als gleichermaßen geeignet.

Infolge von Verzögerungen im ENVISAT-Bodensegment (z. B. bei der Kalibration) wurde die SYNAER-Methodenanpassung an ENVISAT stark verzögert. Ein Vergleich von SYNAER-ENVISAT (V1.8) mit AERONET-Bodenmessungen (Version 2, Level 1.5) wurde daher mit 334 im Februar 2008 prozessierten ENVISAT-Überflügen der Regionen Europa, Afrika und Teilen Südamerikas aus dem ASSET-Zeitraum durchgeführt. Der systematische Fehler von 119 europäischen Vergleichspaaren für $AOD_{SYNAER-AERONET}$ beträgt -0.06 und die Standardabweichung $\sigma_{SYNAER-AERONET}$ ist 0.16. Der RMSE beträgt 0.17 bei einem Korre-

lationskoeffizient von 0.5. Für den Vergleich von ENVISAT-Messungen in Europa, Afrika und Südamerika ergeben sich deutlich schlechtere Werte ($E_s = -0.08$, $\sigma_{\text{SYNAER-AERONET}} = 0.26$, $\text{RMSE} = 0.27$). Im Vergleich zu ERS-2 weisen die Ergebnisse von ENVISAT-SYNAER V1.8 eine starke Streuung auf (Abb. 14).

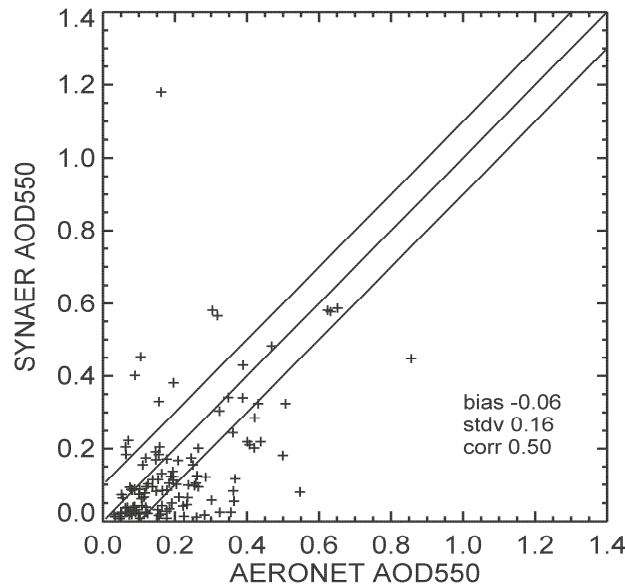


Abb. 14: Vergleich der $\text{AOD}_{\text{SYNAER}}$ der ENVISAT-SYNAER V1.8 Messung mit AERONET für 119 europäische Vergleichspaare in 2003

Die nicht vorhandene Korrelation der Abweichungen mit dem am Boden gemessenen Angström-Parameter macht eine Abhängigkeit der SYNAER-Genauigkeit von der Partikelgröße unwahrscheinlich.

Tab. 9 (Anhang A) enthält aufgeschlüsselt für die einzelnen AERONET-Stationen den systematischen Fehler, die $\sigma_{\text{SYNAER-AERONET}}$ und die Anzahl der genutzten Messungen. Trotz der im Vergleich zu ERS-2 verbesserten ENVISAT-Datenverfügbarkeit ist bei vielen Stationen die Anzahl der vorliegenden Pixelpaare sehr klein.

Jede Station ist in Abb. 15 durch einen Kreis mit dem Radius von $\sigma_{\text{SYNAER-AERONET}}$ und einer Einfärbung entsprechend dem systematischen Fehler von $\text{AOD}_{\text{SYNAER-AERONET}}$ markiert. Auffällig ist das Überschätzen der AOD durch SYNAER in Südspanien, d.h. einer Region mit heller Bodenbede und geringer Anzahl von Dunkelfeldern. Die Stationen weisen $E_s = 0.14$ (El Arenosillo, $L = 5$), $E_s = 0.13$ (Evora, $L = 6$) und eine hohe $\sigma_{\text{SYNAER-AERONET}}$ in El Arenosillo ($\sigma = 0.18$) und Evora ($\sigma = 0.15$) auf. Ansonsten tritt eine Überschätzung größer als 0.1 nur in IMC-Oristano ($E_s = 0.11$, $L = 5$) auf. IMC-Oristano weist insbesondere eine hohe $\sigma_{\text{SYNAER-AERONET}} = 0.51$ auf, die sich auf fehlerhaft nicht erkannte Wolken in der Satellitenbeobachtung zurückführen lässt.

Eine Unterschätzung der AOD um mehr als 0.15 wird in Carpentras ($E_s = -0.16$, $L = 4$), Fontainebleau ($E_s = -0.3$, $L = 3$), Helgoland ($E_s = -0.22$, $L = 2$), Palaiseau ($E_s = -0.19$, $L = 3$) und Toulouse ($E_s = -0.15$, $L = 6$) beobachtet. Die Stationen Carpentras und Helgoland liegen an der Küste bzw. auf einer Insel. Die Satellitenmessungen beschreiben daher den Zustand in einem vom Meer geprägten Pixel und eine Unterschätzung erscheint plausibel. Ebenso ist eine Unterschätzung an den Stationen Fontainebleau und Palaiseau plausibel, da diese im

Ballungsraum Paris liegen und innerhalb des wesentlich größeren Satellitenpixels evt. ein lokales Maximum beschreiben.

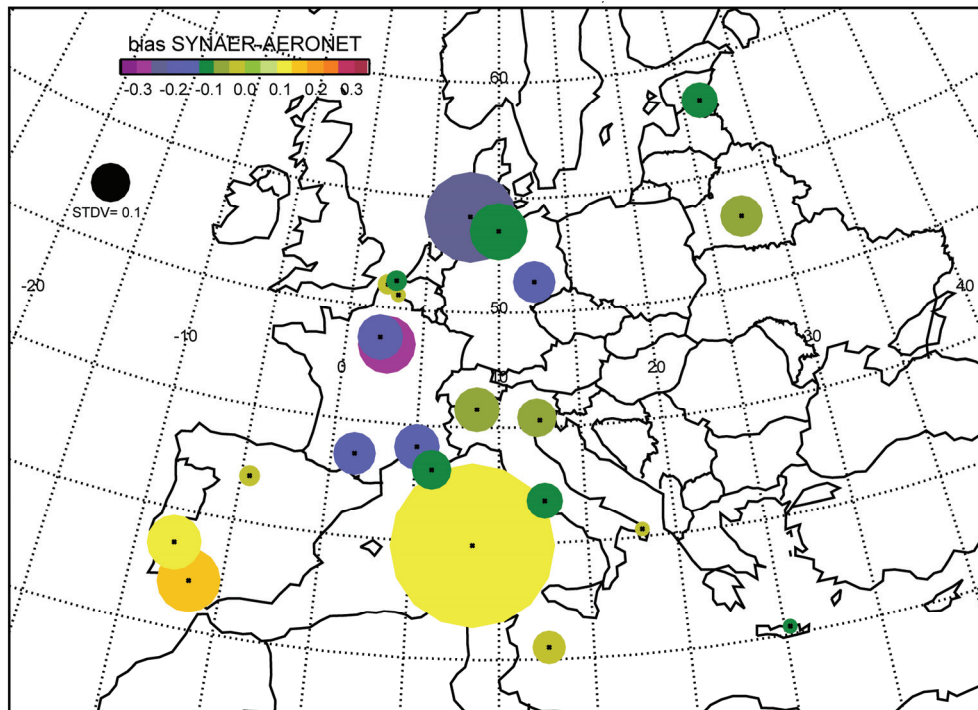


Abb. 15: Europäische Karte aller AERONET-Stationen

Dargestellt ist der systematische Fehler (Farbskala) zusammen mit $\sigma_{\text{SYNAER-AERONET}}$ (Kreisradius) für jede AERONET-Station und ENVISAT-SYNAER V1.8 Messungen in 2003.

4.4 Qualitätskontrolle der SYNAER-Beobachtungen

Vor der Assimilation sollten die Beobachtungen einer Qualitätskontrolle unterliegen, um offensichtlich fehlerhafte oder aufgrund der physikalischen Randbedingungen möglicherweise mit einem großen Fehler behaftete Beobachtungen auszusortieren. Dies ist nötig, da das verwendete Assimilationsverfahren Fehler in Modellhintergrund und Beobachtungen als gauss-verteilt annimmt.

Aus der Physik der Satellitenmessung werden folgende Parameter als relevant eingeschätzt:

- Ein großer Sonnenzenitwinkel (SZA) verschlechtert das Signal-zu-Rausch-Verhältnis. Messungen mit einem $\text{SZA} > 75^\circ$ werden daher ausgeschlossen.
- Trotz der vorhandenen Wolkenkorrektur stellt sich die Frage bis zu welchem Wolkenbedeckungsgrad ausreichend genau korrigiert wird.
- Eine hohe Bodenalbedo von Land- und Wasserflächen (A_l , A_w) verschlechtert das Signal-zu-Rausch-Verhältnis.
- Nur ein Teil der vorgegebenen 40 Aerosolmischungen kann i. A. voneinander getrennt werden. Falls die Reflektanzen R des Spektrums der j -ten Aerosolmischung an den 10 Wellenlängen λ_i nahe bei dem am besten zur Satellitenmessung passenden Spektrum der k -ten Mischung liegen, so werden diese als ununterscheidbar bezeichnet.

Hierfür gilt die Bedingung

$$\sum_{i=1}^{10} (R_{\lambda_i,j} - R_{\lambda_i,k})^2 < \sum_{i=1}^{10} (R_{\lambda_i,meas} - R_{\lambda_i,k})^2 \quad (30)$$

Aus den AOD aller p ununterscheidbaren Aerosolmischungen wird der ‚Fehler durch Mehrdeutigkeit‘ E_m als einheitenloses Fehlermaß der AOD bestimmt

$$E_m = \sqrt{\sum_{j=1}^p \frac{(AOD_j - AOD_k)^2}{p-1}} \quad (31)$$

- Beim Vergleich des Spektrums der am besten mit der Messung übereinstimmenden k -ten Aerosolmischung mit dem gemessenen Satellitenspektrum kann ein großer Fitfehler E_f

$$E_f = \sqrt{\sum_{i=1}^{10} (R_{\lambda_i,meas} - R_{\lambda_i,k})^2} \quad (32)$$

zwischen beiden Spektren als Hinweis für eine fehlerhafte Messung gewertet werden. E_f ist ebenfalls eine einheitenlose Größe.

Abb. 16 zeigt für ENVISAT-SYNAER V1.8 aus dem Zeitraum 2003 die Verteilung der Differenzen von $AOD_{SYNAER-AERONET}$ als Funktion dieser Parameter. Daraus ergeben sich folgende Kriterien:

- Große positive Differenzen $AOD_{SYNAER-AERONET}$ bestehen für $E_m > 0.1$ bei gleichzeitigem $A_l > 0.15$.
- Große negative $AOD_{SYNAER-AERONET}$ werden für $E_m > 0.05$ und gleichzeitigen $A_w > 0.05$ beobachtet.
- Zusätzlich filtert das Kriterium $E_f > 0.025$ ebenfalls Ausreißer heraus.
- SYNAER verwirft generell Messungen mit einem Wolkenbedeckungsgrad größer als 50%. Unterhalb von 50 % Bedeckungsgrad ergibt sich für den vorliegenden Datensatz keine Abhängigkeit vom Bedeckungsgrad.

Für den gesamten Datensatz in Europa und Afrika verbessern diese Kriterien die statistischen Kennzahlen $\sigma_{SYNAER-AERONET}$ von 0.27 auf 0.10 bei gleichbleibendem systematischem Fehler (Abb. 17:). Der RMSE wird von 0.27 auf 0.12 reduziert und der Korrelationskoeffizient steigt von 0.3 auf 0.73 an. Die Anzahl der verfügbaren Validierungspaare sinkt um 24% auf 105 Paare ab. Durch diese in SYNAER verfügbaren Zusatzinformationen können eine Vielzahl der großen $AOD_{SYNAER-AERONET}$ eliminiert werden.

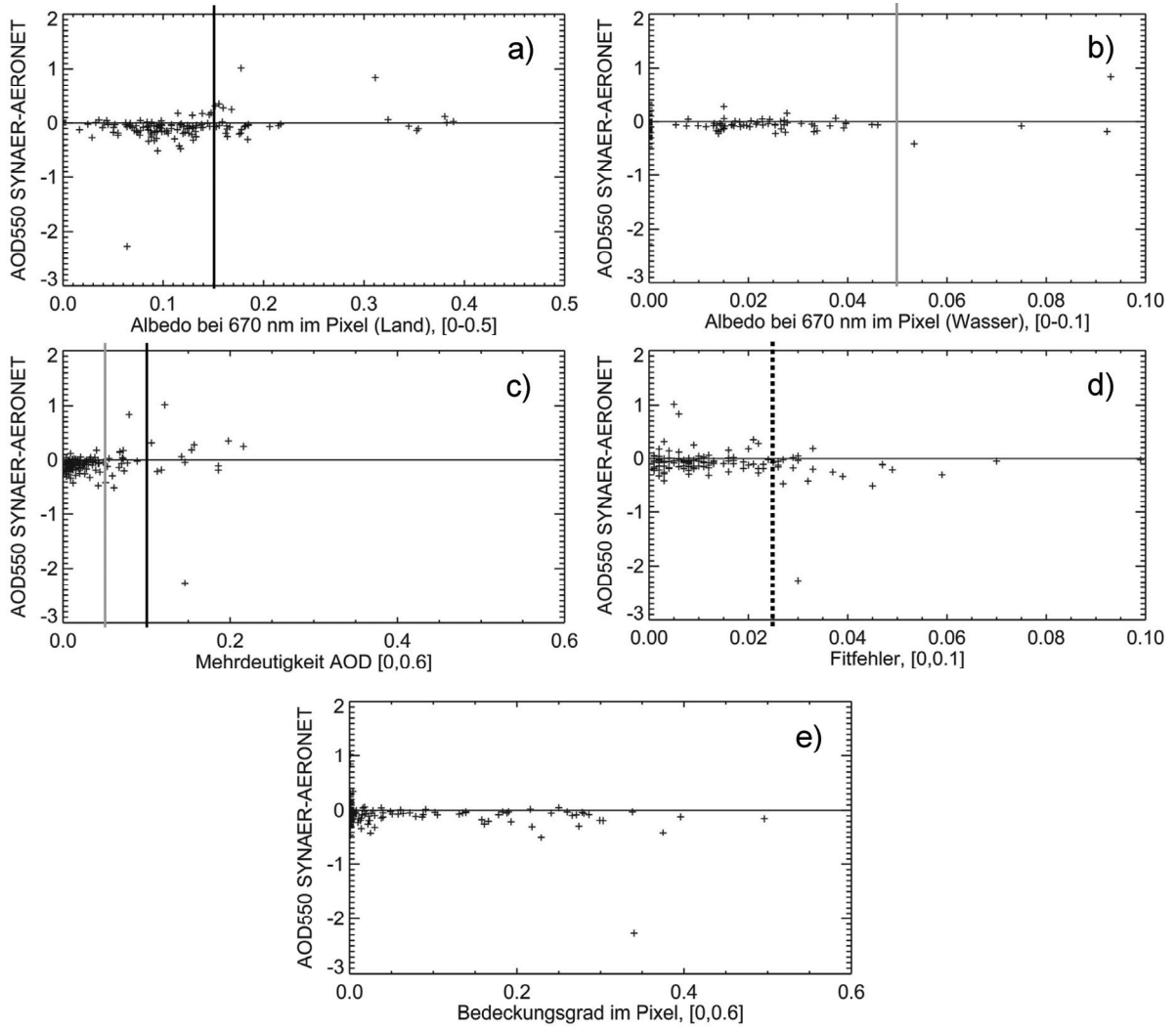


Abb. 16: $AOD_{\text{SYNAER-AERONET}}$ als Funktion retrievalinterner Parameter
 Dargestellt sind verschiedene Einflussparameter: Bodenalbedo des Landanteils im Satellitenpixel (a), Bodenalbedo des Wasseranteils im Satellitenpixel (b), Fehler durch Mehrdeutigkeit E_m (c), Fit-Fehler E_f (d) und der Wolkenbedeckungsgrad im Satellitenpixel (e) für ENVISAT-SYNAER V1.8. Als vertikale Linien sind zusätzlich die in der Qualitätskontrolle angewandten Schwellwerte eingezeichnet.

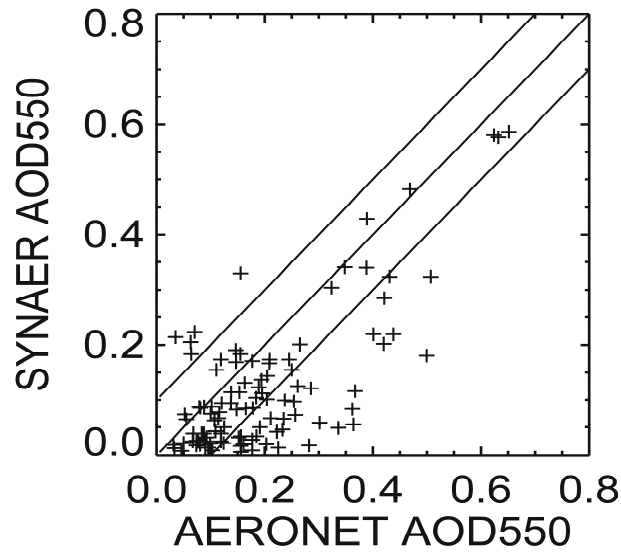


Abb. 17: Vergleich der AOD_{SYNAER} der ENVISAT V1.8 Messung nach der automatischen Qualitätskontrolle mit AERONET für 105 Vergleichspaare in Europa und Afrika in 2003

Auf der Basis der Validierungsergebnisse und dieser Qualitätskontrolle kann nun \mathbf{R} aufgebaut werden. Da die einzelnen AERONET-Stationen auch für den gesamten ASSET-Datensatz keine großen Fallzahlen erreichen, wird vorerst kein regional variables \mathbf{R} definiert. Stattdessen wird für die Diagonalelemente ein konstanter Wert von 0.12 angenommen.

4.5 Validierung des Hintergrundfelds

Zur Bestimmung von \mathbf{B} wird das Hintergrundfeld ebenfalls mit AERONET-Messungen (Version 2, Level 2) für wolkenfreie Situationen validiert.

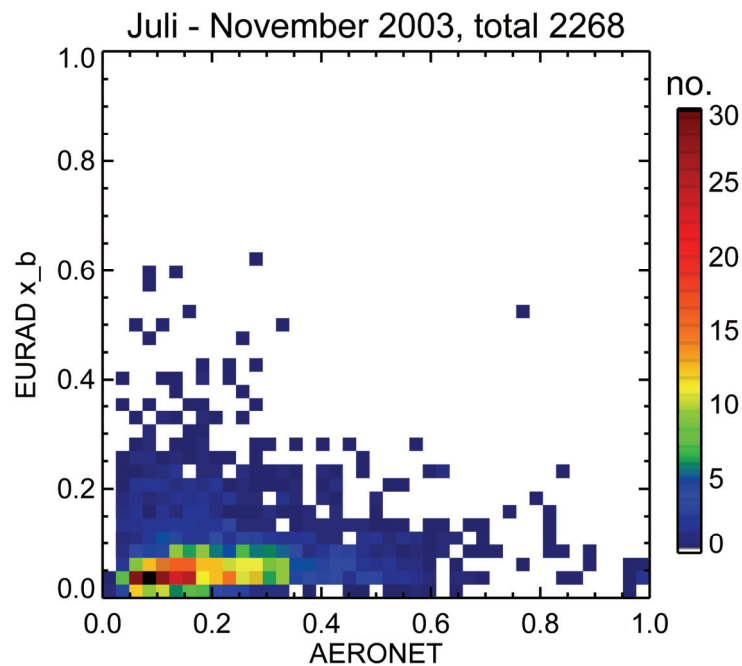


Abb. 18: Zweidimensionales Histogramm der AOD_{EURAD} vs. $AOD_{AERONET}$ (jeweils 10 UTC im Zeitraum Juli – November 2003)

Diese Einschränkung gilt für fast alle Meßmethoden, da im bewölkten Fall nicht zwischen Aerosolpartikeln und Wolkentröpfchen unterschieden werden kann. Die einzige Ausnahme sind flugzeuggetragene Kampagnen-Messungen, die allerdings nicht in der nötigen raumzeitlichen Auflösung bereitstehen.

Es wird zunächst die in Kap. 6.2, Gl. (35) und (36) abgeleitete Qualitätskontrolle angewandt. Abb. 18 zeigt ein zweidimensionales Histogramm der AOD_{EURAD} im Vergleich zur $AOD_{AERONET}$ für insgesamt 2268 Datenpaare. Der systematische Fehler von $AOD_{EURAD-AERONET}$ liegt bei -0.15 und $\sigma_{EURAD-AERONET}$ beträgt 0.17. EURAD zeigt eine starke Unterschätzung insbesondere von $AOD > 0.1$ und das generell nur vereinzelte Auftreten von Werten der $AOD_{EURAD} > 0.25$. Dies entspricht der z.B. von Sartelet et al. (2007) für das POLYPHEMUS-Modell beobachteten mittleren PM10-Unterschätzung von -7 % zu EMEP-Messungen, von -42 % zu AirBase-Messungen und -25 % zu BDQA-Messungen sowie der ebenfalls festgestellten mittleren PM2.5-Unterschätzung von -29 % zu EMEP-Messungen für das Jahr 2001 in Europa. Der gleiche Effekt einer generellen Unterschätzung der PM10-Konzentrationen in Ballungsräumen von Modellen mit einer horizontalen Auflösung auf der 50 km-Skala im Vergleich zu EMEP-Messungen wurde auch von Vautard et al. (2007) für die Modelle CHIMERE, EMEP, LOTOS, REM-CALGRID, OFIS und CAMx im Simulationsjahr 1999 gefunden.

Die Untersuchung einzelner Monate (Abb. 19) zeigt Unterschiede zwischen dem Juli und August des Hitzesommers 2003 und dem September, Oktober und November. So treten im Juli und insbesondere im August verstärkt $AOD_{AERONET} > 0.2$ auf. Satellitenbilder des NOAA-AVHRR-Instruments zeigen großflächige Staubausrüche aus der Sahararegion am 14.-18.7., 21.-24.7., 5.-9.8. und 27.-29.8., die zu einem Anstieg der $AOD_{AERONET}$ auf bis zu 1.5 in Südeuropa führen (Breitkreuz, 2006). Da EURAD in einer Version ohne Staubmodul verwendet wurde, lassen sich die großen Abweichungen auf europäischer Skala erklären.

Es ist außerdem zu vermuten, dass die auch an den anderen Tagen gemessenen höheren Aerosolkonzentrationen auf einer verstärkten Erosion z.B. von landwirtschaftlichen Flächen in den außergewöhnlich heißen und trockenen Sommermonaten 2003 beruhen, die in den EURAD-Emissionskatastern nicht enthalten ist.

Die generelle Tendenz der Unterschätzung durch AOD_{EURAD} bleibt jedoch auch in den Herbstmonaten erhalten (Tab. 7). Dazu trägt ein weiteres Staubausruch-Ereignis vom 29. September – 2. Oktober 2003 in Italien bei.

Monat	Anzahl	E_s $AOD_{EURAD-AERONET}$	$\sigma_{EURAD-AERONET}$
Juli 2003	566	-0.17	0.17
August 2003	594	-0.21	0.17
September 2003	517	-0.10	0.13
Oktober 2003	324	-0.10	0.21
November 2003	267	-0.08	0.15

Tab. 7: Monatliche Validierungsergebnisse für $AOD_{EURAD-AERONET}$ um 10 UTC

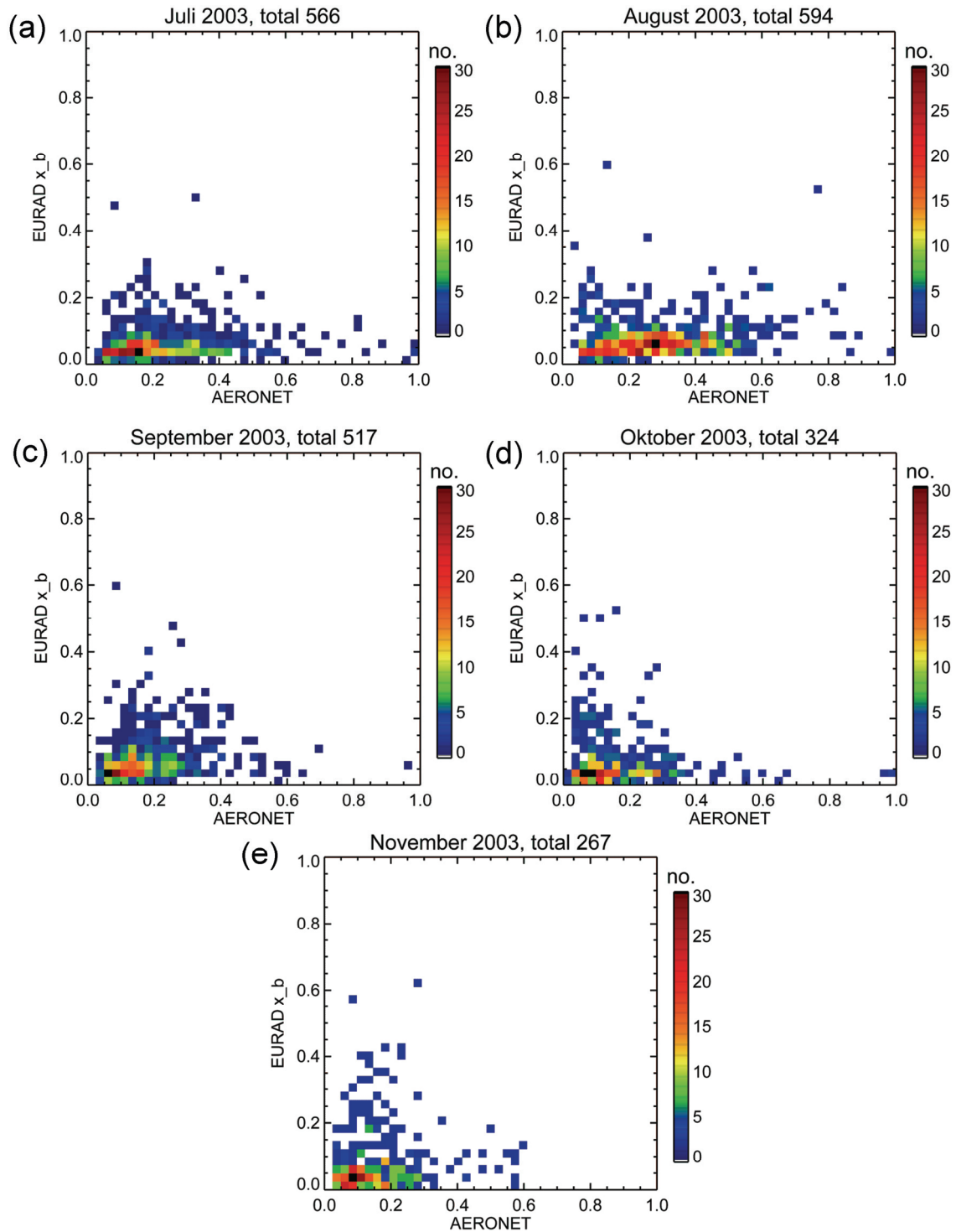


Abb. 19: Monatsweises 2D-Histogramm der AOD_{EURAD} vs $AOD_{AERONET}$

(jeweils 10 UTC für die Monate Juli (a), August (b), September (c), Oktober (d) und November 2003 (e))

Eine nach AERONET-Stationen getrennte Validierung (Tab. 10 in Anhang A und Abb. 20) zeigt einen negativen systematischen Fehler der $AOD_{EURAD-AERONET}$ an fast allen Stationen. Kleine Werte bis -0.1 treten v. a. in Spanien, Algerien, Irland, Skandinavien, den Niederlanden, Norddeutschland und Osteuropa auf. Die größten negativen Abweichungen werden an den Stationen Etna (Sizilien, $E_s = -0.25$), IMC-Oristano (Sardinien, $E_s = -0.22$), IMS-METU (Türkei, $E_s = -0.21$) und in der Po-Ebene Italiens an den Stationen ISDGM-

CNR (bei Venedig, $E_s = -0.20$), Ispra ($E_s = -0.23$) und Venedig ($E_s = -0.21$) beobachtet. Insbesondere die Station IMC-Oristano fällt außerdem durch eine sehr hohe $\sigma_{\text{EURAD-AERONET}} = 0.32$ gefolgt von den Stationen Ispra ($\sigma = 0.28$) und Rom ($\sigma = 0.23$) auf. An den Stationen Etna, IMC-Oristano, Lampedusa, Lecce und Rom kann dies durch die Staubausbrüche erklärt werden. An den anderen Stationen muss eine Unterschätzung infolge zu geringer Werte des Emissionskatasters angenommen werden.

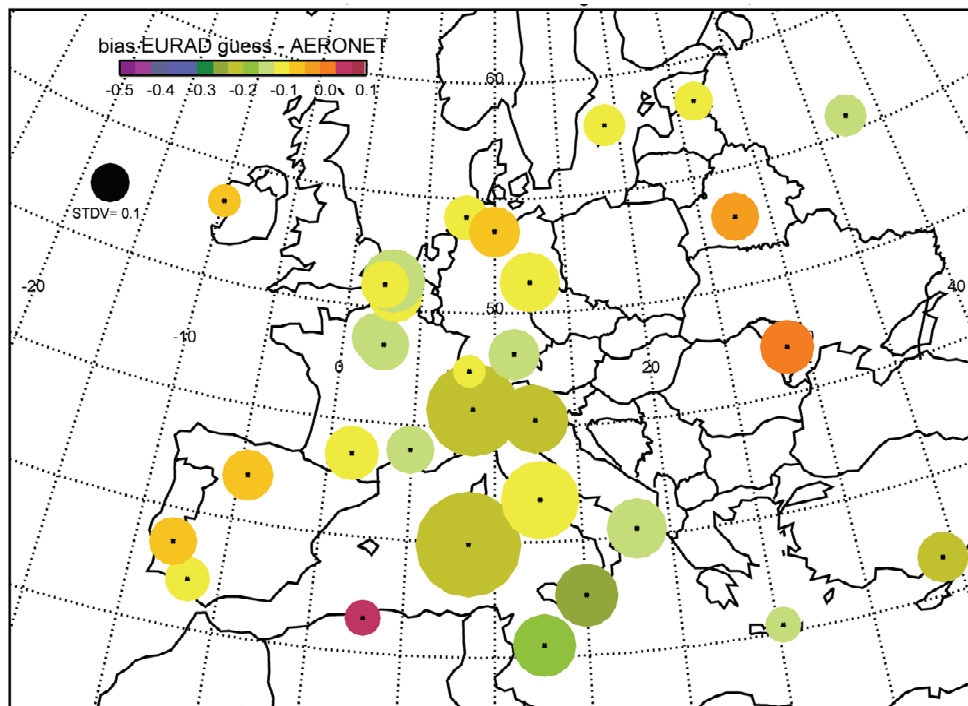


Abb. 20: Europäische Karte der EURAD-Validierungsergebnisse für jede AERONET-Station. Dargestellt ist der systematische Fehler der $AOD_{\text{EURAD-AERONET}}$ (Farbskala) zusammen mit der $\sigma_{\text{EURAD-AERONET}}$ (Kreisradius). Verwendet wurden die EURAD-Modellfelder des Zeitraums Juli – November 2003 jeweils um 10 UTC.

Zusätzlich zur Validierung des gesamten ASSET-Zeitraums wurden die europäischen Karten auch für die einzelnen Monate Juli, August, September, Oktober und November 2003 mit ihren hohen negativen Abweichungen (Abb. 21) erstellt. In Nordeuropa und auf der Iberischen Halbinsel kann im August 2003 eine größere Standardabweichung als in den anderen Monaten festgestellt werden. In den anderen Monaten fallen Stationen mit hoher Standardabweichung in Südeuropa und v.a. in Italien auf.

Zweifelhaft erscheint die sehr hohe $\sigma_{\text{EURAD-AERONET}} = 0.91$ bei gleichzeitig sehr hohem negativen $E_s = -0.46$ für die Station IMC_Oristano im Oktober 2003. Farbkomposite der Meteosat-Satelliten zeigen, dass am 1. und 2.10.2003 Wolken zu sehr hohen AERONET-Messungen von 1.17 und 2.3 geführt haben und weder in der automatischen noch in der manuellen Fehlerkorrektur der Level-2 AERONET-Messungen gefunden wurden.

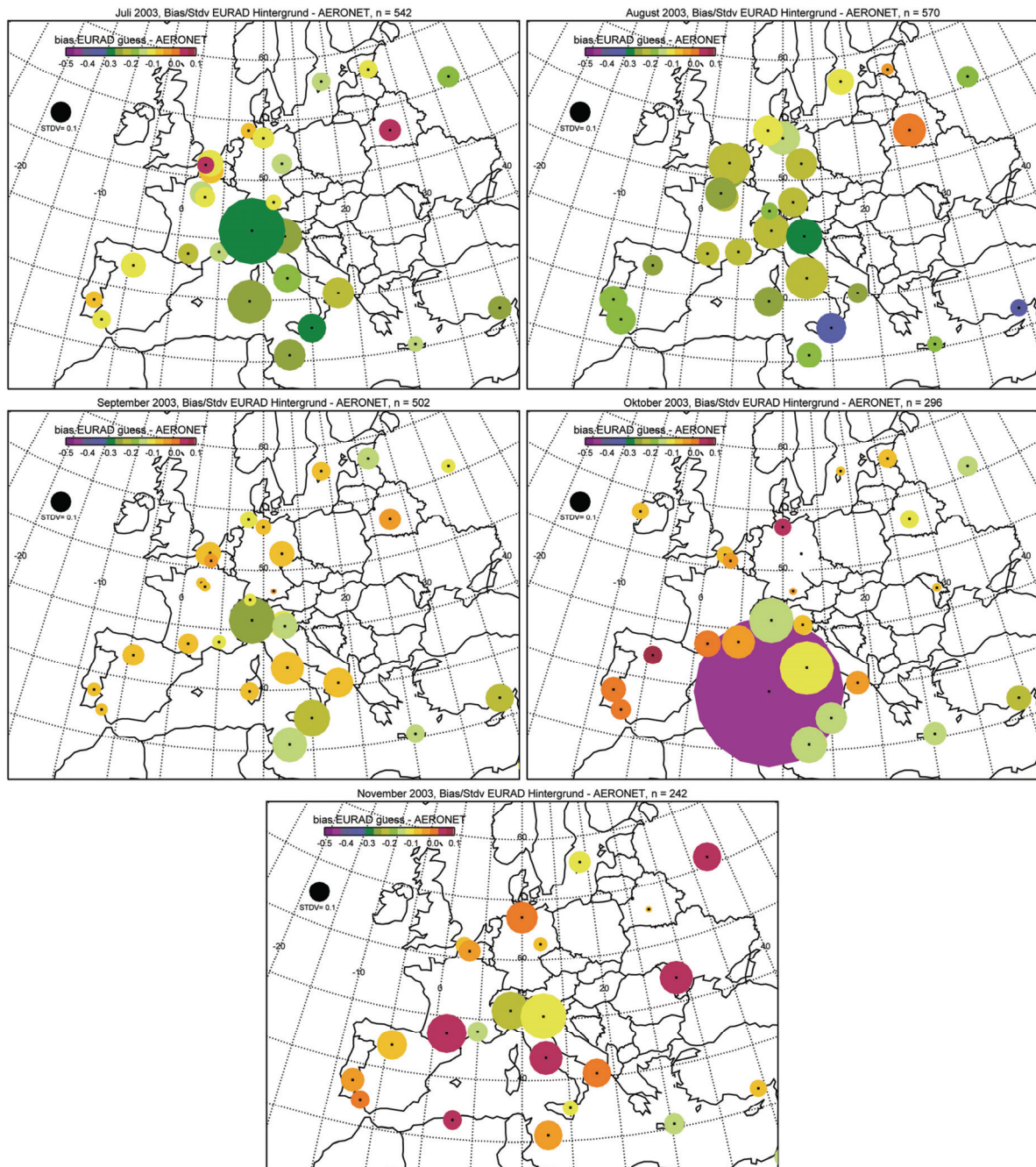


Abb. 21: Europäische Validierungskarte für jede AERONET-Station nach Monaten getrennt. Dargestellt ist der systematische Fehler von $AOD_{EURAD-AERONET}$ (Farbskala) zusammen mit der $\sigma_{EURAD-AERONET}$ (Kreisradius).

Entsprechend der Theorie der variationellen Assimilation sollten Beobachtungen und Hintergrundfeld möglichst frei von systematischen Fehlern sein. Das Hintergrundfeld jedoch weist im Vergleich zu AERONET-Messungen einen deutlich negativen $E_s = -0.15$ für den ASSET-Zeitraum auf. Parallel zu dieser Arbeit laufen Entwicklungsarbeiten zur Verbesserung der Emissionsstatistiken und zur Integration eines Staubmoduls in EURAD. Daher wird im Rahmen dieser Arbeit mit dem Schwerpunkt der Methodenentwicklung für den **H**-Operator keine spezielle Aufbereitung des Hintergrundfelds vorgenommen und auf eine

Regionalisierung von \mathbf{B} verzichtet. Stattdessen wird ein im Vergleich zu $\sigma = 0.17$ für den gesamten ASSET-Zeitraum größerer Wert von 0.3 als Diagonalelement von \mathbf{B} angenommen.

4.6 Vergleich von Beobachtungen und Hintergrundfeld

Der Vergleich der gesamten AOD zeigt eine Unterschätzung der AOD_{EURAD} im Vergleich zu AOD_{SYNAER} (Abb. 22). Auffällig sind zwei Bereiche mit

- $AOD_{SYNAER} > 0.2$, die in AOD_{EURAD} nicht auftreten. Hierbei kann es sich um Fehler der Satellitenmessung, um Regionen mit hohen Emissionen oder um Einzelereignisse mit hoher Aerosolkonzentration wie z.B. Staubaussbrüchen handeln, die in der verwendeten EURAD-Version nicht wiedergegeben werden.
- $AOD_{EURAD} > 0.2$, die AOD_{SYNAER} nicht vorhanden sind. Diese können teilweise den Rändern von Regionen mit unrealistisch hohen Aerosolsäulenkonzentrationen zugeordnet werden (Kap. 6.2).

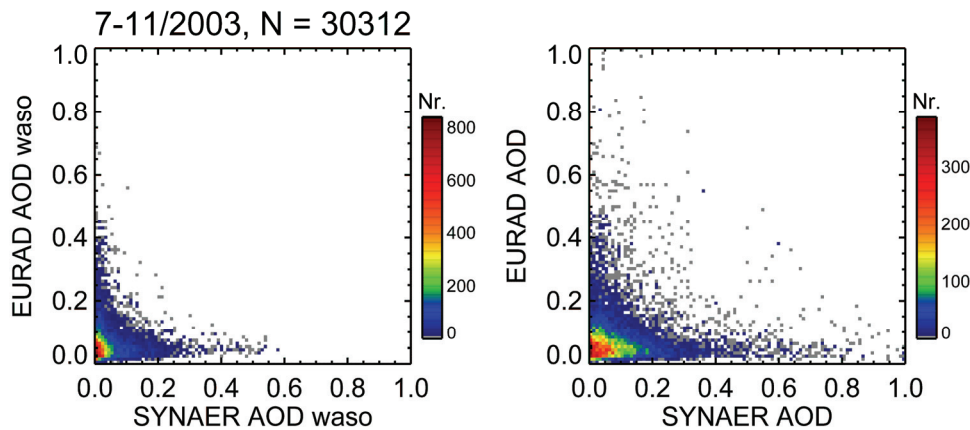


Abb. 22: Zweidimensionale AOD-Histogramme von EURAD vs ENVISAT-SYNAER V1.8
Dargestellt sind die Aerosolkomponente WASO (links) und die Summe aller Aerosolkomponenten (rechts) für den Zeitraum Juli – November 2003.

Betrachtet man alle Komponenten, so modelliert EURAD für $AOD_{Gesamt} < 0.2$ kleinere AOD_{Gesamt} als SYNAER. Betrachtet man dagegen nur die WASO-Komponente, so modelliert EURAD für $AOD_{WASO} < 0.1$ höhere AOD_{WASO} als SYNAER und kompensiert so teilweise die Unterschätzung der SOOT-Komponente (s. u.) und das Fehlen von Staub- und Seesalzaerosolen in dieser Modellversion. Dies entspricht der von Sartelet et al. (2007) für das POLYPHEMUS-Modell in 2001 für Europa festgestellten mittleren Überschätzung von Sulfaten um 41 % im Vergleich zu AirBase-Messungen, von 8 % bei Nitraten und 15 % bei Ammonium an Hintergrundstationen mit typischerweise kleinen Werten.

Im Mittel besonders hohe Differenzen (Beobachtung minus Hintergrundfeld, OmF) haben die Stationen Etna, IMC_Oristano (jeweils 0.08), IMS_Metu_Erdemli, Lampedusa (jeweils 0.07), Ispra, Nes Ziona (jeweils 0.06), Avignon, Palaiseau und Venise mit jeweils 0.05. Diese Stationen liegen entweder in den von Sandsturmbursten belasteten Regionen, in der Po-Ebene oder in Ballungsräumen.

Da sich die AOD_{EURAD} und AOD_{SYNAER} in den INSO- und SOOT-Komponenten sehr unterscheiden, wird in Abb. 23 für diese Komponenten das Verhältnis AOD_{EURAD}/AOD_{SYNAER} als Funktion der AOD_{SYNAER} dargestellt. Sehr kleine AOD_{SYNAER} -Werte < 0.01 werden dabei

ausgeschlossen. $AOD_{SYNAER, INSO}$ weist kleine Werte bis zu maximal 0.1 auf. Trotzdem erreichen die $AOD_{EURAD, INSO}$ in fast allen Fällen nur bis zu 15 % der $AOD_{SYNAER, INSO}$. Die kleinen $AOD_{SYNAER, INSO}$ -Werte erscheinen plausibel, da die großen INSO-Partikel bei 550nm nur eine geringe optische Wirkung haben. Andererseits ist die Genauigkeit der Typerkennung bei kleiner AOD begrenzt. Daher wird keine Bewertung der Unterschiede zwischen EURAD und SYNAER vorgenommen.

Der Vergleich der SOOT-Komponente ergibt ebenfalls einen großen Unterschied zwischen Modell und Satellit. $AOD_{SYNAER, SOOT}$ weist mit bis zu 0.3 deutlich höhere Werte auf als $AOD_{SYNAER, INSO}$. $AOD_{EURAD, SOOT}$ dagegen erreicht für $AOD_{SYNAER, SOOT} > 0.06$ nur maximal 10 % des beobachteten Wertes. Nur für sehr kleine $AOD_{SYNAER, SOOT} < 0.02$ erreichen $AOD_{EURAD, SOOT}$ bis zu 100% der $AOD_{SYNAER, SOOT}$. Die dem Anteil des Rußaerosols entsprechenden EURAD-Partikelzahlen betragen maximal 7 Partikel/cm³ in den unteren 5 Modellschichten und i. A. sind es nur 1-2 Partikel/cm³. In SYNAER werden dagegen typischerweise 30 bis 300 Partikel/cm³ beobachtet.

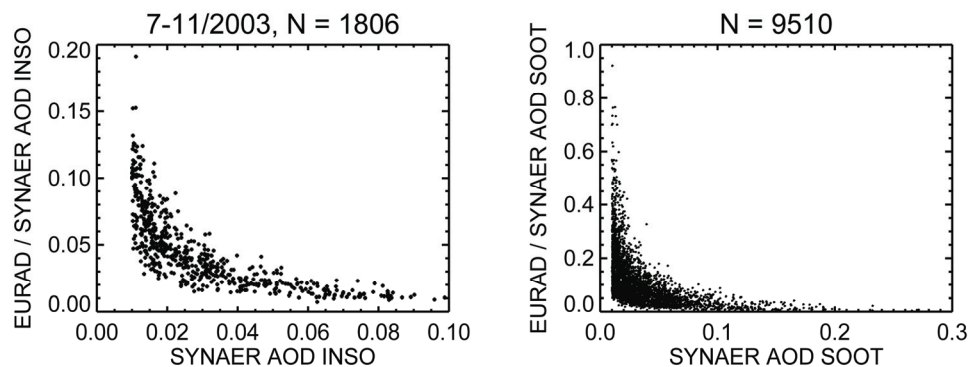


Abb. 23: $AOD_{EURAD/SYNAER}$ als Funktion der AOD_{SYNAER} für INSO (links) und SOOT (rechts)

Im diesem Fall können weitere Informationsquellen zur Bewertung der sehr kleinen $AOD_{EURAD, SOOT}$ genutzt werden. Putaud et al. (2003) gibt gemessene bodennahe Massenkonzentrationen verschiedener Aerosolklassen an. Typische Ruß-Massenkonzentrationen liegen bei 0.2 - 0.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ als natürlicher Hintergrundkonzentration, 0.5 – 1.99 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ in ländlichen Regionen, 1.3 – 1.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ in Stadtnähe, 1.9 – 3.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ in urbanen Regionen und 3 – 11 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ in einzelnen stark belasteten Straßenschluchten. In der unteren EURAD-Modellschicht werden Massenkonzentrationen elementaren Rußes bis zu 6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ modelliert. In den Regionen mit höheren EURAD-Massenkonzentrationen sind jedoch in den Fallbeispielen entweder keine SYNAER-Überflüge vorhanden (z.B. 15. Okt. 1997 mit 5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ in London oder am 25. Okt. 1997 mit 4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ in London) oder der in Kap. 6.2 beschriebene ‚Wolkenfilter‘ blendet diese Gitterzellen aus (z.B. Werte von 2.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ in der Benelux-Region am 25. Sept. 1997 oder von 6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ in Norditalien am 25. Dez. 1997). Der Vergleich von EURAD mit SYNAER beinhaltet daher tendenziell nur Fälle mit sehr kleinen Ruß-Massenkonzentrationen im Modell.

Collins et al. (2001) geben mit dem MATCH-Modell für Ruß bei 630 nm eine $AOD \leq 0.1$ in unbelasteten Ozeanregionen im Pazifik und bis zu 0.28 in stark belasteten Regionen Indiens als Mittelwerte für den 1.-14.3.1999 an. Dies entspricht bei 550 nm einer mittleren $AOD \leq 0.13$ in unbelasteten Regionen und bis zu 0.36 in stark belasteten Regionen. Die Belastung durch Rußaerosole in Indien und Europa lassen sich infolge unterschiedlicher Emissionscharakteristiken nicht vergleichen. Es fällt aber doch auf, dass selbst die MATCH-Ergebnisse von unbelasteten Pazifikregionen von EURAD in Europa nicht erreicht werden.

In Sensitivitätsuntersuchungen wurde geprüft, ob eine der bei der Berechnung von $AOD_{EURAD,SOOT}$ gemachten Annahmen für die sehr kleinen modellierten Werte verantwortlich gemacht werden kann:

- Variation des angenommenen Modenradius der Größenverteilung zwischen 0.05, 0.1 und 0.5 μm
- Variation der Dichte von 1 g/cm^3 wie in OPAC beschrieben zu 2.2 g/cm^3 wie in EURAD genutzt
- Zuordnung der gesamten Aerosolmasse in den bei 550 nm optisch wirksameren Akkumulationsmode statt der im Modell realisierten Aufteilung in den Nukleations- und Akkumulationsmode im Verhältnis von 9:1
- Variation des Brechungsindex von $1.49 + 0.67i$ für Dieselruß (Schnaiter et al., 2003) über $1.75 + 0.44i$ als dem OPAC-Wert zu $1.5 + 0.01i$ wie in Dubovik et al. (2002) für Biomasseverbrennung

Jedoch können diese Variationen keinen ausreichend starken Effekt verursachen. Daher muss vermutet werden, dass in EURAD die Rußemissionen als Quelle unterschätzt werden. Alternativ könnte auch der in Kap. 6.2 beschriebene Effekt der hohen Aerosolkonzentrationen in Regionen starker horizontaler, bodennaher Konvergenz zu dieser Diskrepanz zwischen Modell und Beobachtung beitragen. Dies muss im Rahmen der Modellentwicklung weiter untersucht werden.

4.7 Realisierung der 2D-Var-Methode

Satellitenbeobachtungen sind i.A. in Raum und Zeit unregelmäßig verteilt und müssen auf die raum-zeitliche Struktur des Modells abgebildet werden. Die Beobachtungen liegen je nach Region in Europa zwischen 8:30 und 11:00 UTC mit einem Schwerpunkt zwischen 9:30 und 10:30 UTC vor. Daher wird ein Zeitfenster von ± 2 Stunden zentriert bzgl. 10 UTC genutzt. Sobald sich eine EURAD-Gittersäule im Sichtbereich des Satelliten befindet, berührt diese Gittersäule i.A. mehrere GOME-Pixel. Es werden daher alle GOME-Pixel gemittelt, deren Zentrum sich innerhalb einer Gittersäule befindet.

Da in der genutzten EURAD-Version Seesalz und mineralischer Staub noch nicht implementiert wurden, wird die Assimilation derzeit nur für die Komponenten WASO, INSO und SOOT durchgeführt.

Zur Minimierung der Kostenfunktion variationeller Assimilationsverfahren können verschiedene numerische Algorithmen genutzt werden (Gill et al., 1981). Im Rahmen dieser Arbeit wird die von Liu und Nocedal (1989) vorgeschlagene L-BGFS (Limited memory Broyden-Fletcher-Goldfarb-Shanno) - Methode verwendet. Sie gehört zu den Quasi-Newton-Verfahren. Eine weitere Beschreibung findet sich in Klasen (2003).

Für die Modellierung von **B** und **R** wird ein Diffusionsansatz nach Weaver und Courtier (2001) verwendet. In der Horizontalen werden isotrope und in der Vertikalen auf Null gesetzte Diffusionskoeffizienten verwendet. In dieser Methode können horizontal inhomogene Diffusionskoeffizienten verwendet werden, um lokale Gegebenheiten wie z.B. die Repräsentativität einzelner Aerosolmessungen, kleinräumige Windsysteme oder vorherrschende Hauptwindrichtungen zu berücksichtigen. Eine regionale Modifikation der Diffusion basierend auf Ensemble-Prognosen beschreiben Nieradzik und Elbern (2006).

Die räumliche Ausdehnung des Einfluss einzelner Messungen wird durch die Korrelationslänge der horizontalen Diffusion bestimmt, die auch als Breite einer Gauss-Verteilung

interpretiert werden kann. Es wurden Korrelationslängen zwischen 0.1 und 3 Gitterzellen (d.h. 5 und 150 km bei einem Gitterzellenabstand von 56 km) analysiert. Dies entspricht den von Anderson et al. (2003) in Boden-, Flugzeug- und Space Shuttle-Messungen gefundenen AOD-Korrelationslängen < 200 km für die Meso-Skala. Angewandt wurde eine Korrelationslänge von 0.5 Gitterzellen, da diese der SYNAER-Pixelgröße entspricht.

In der Definition von **R** werden die Aerosolkomponenten WASO, INSO und SOOT nicht unterschieden. Da es keine komponentenweisen Validierungsmessungen der AOD gibt, lässt sich kein komponenten-spezifischer Fehler quantifizieren.

Derzeit benötigt ein Assimilationslauf für das vollständige EURAD-Gitter mit 85×95 Gitterzellen für Europa eine Rechenzeit von 50 Minuten auf einer SunFire-V440 mit einem 1270 MHz Prozessor. Dies umfasst den dreimaligen Aufruf der variationalen Assimilation für die Komponenten WASO, INSO und SOOT. Im operationellen Betrieb wird die AOD-Berechnung nur für eine lokale Umgebung von 3-5 Gitterzellen rund um die Beobachtungen benötigt und reduziert sich bei typischerweise 2 Satellitenüberflügen pro Tag im Modellgebiet auf circa die Hälfte. Die Rechenzeit zur Berechnung der AOD reduziert sich z.B. auf einem Dual-Xeon-Linux-PC mit einem 3 GHz Prozessor nochmals auf 38%. Ein Assimilationslauf mit zwei Überflügen sollte daher eine Rechenzeit von ca. 10 Minuten auf einem Linux-PC-System erfordern. Daher wird angenommen, dass die numerische Komplexität des Verfahrens den operationellen Einsatz nicht einschränkt.

4.8 Statistik der Analyseinkremente

Im folgenden Kapitel wird die Statistik der Analyseinkremente der einzelnen Aerosolkomponenten für den gesamten ASSET-Zeitraum untersucht. Die Differenzen zwischen Beobachtungen und Hintergrundfeld am Ort der Beobachtungen werden dabei als ‚Observation-Forecast‘ (OmF) und die Differenzen zwischen Beobachtungen und Analysefeld am Ort der Beobachtungen als ‚Observation-Analysis‘ (OmA) bezeichnet.

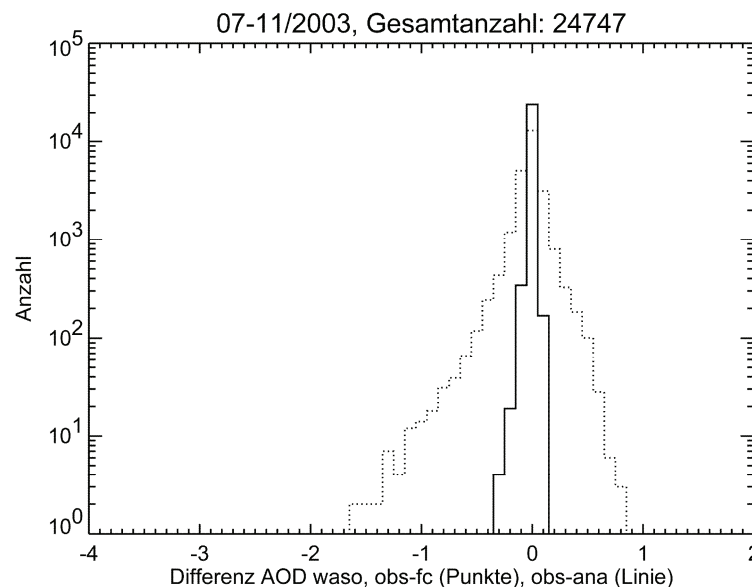


Abb. 24: Histogramme der OmF_{WASO} (Punkte) und der OmA_{WASO} (Linie) für den gesamten ASSET-Zeitraum

Abb. 24 zeigt eine nach der Assimilation im Vergleich zu den OmF_{WASO} deutlich schmalere Histogrammverteilung der OmA_{WASO} . Trotz der in Kap. 6.2 beschriebenen Filterung des EURAD-Modells zur Vermeidung unrealistisch hoher AOD-Werte treten in einzel-

nen Gitterzellen negative OmF_{WASO} bis zu -3.1 auf. Dies kann in den OmA erfolgreich korrigiert werden, es bleibt aber eine zu negativen OmA verschobene Verteilung bestehen.

Die Histogramme der SOOT- und INSO-Komponenten (Abb. 25) weisen stark positive OmF auf, die durch die typweise Assimilation in den OmA-Histogrammen nur noch reduziert auftreten.

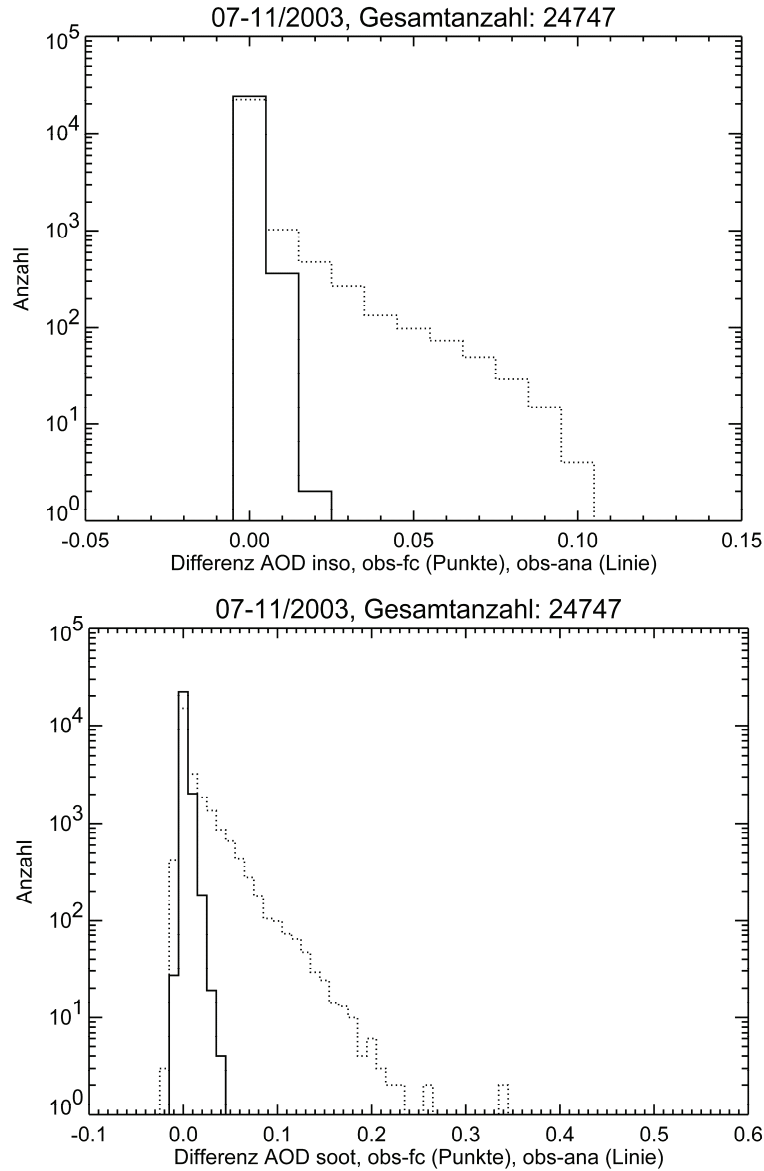


Abb. 25: Histogramme der OmF (Punkte) und der OmA (Linie) für die INSO-Komponente (oben) und die SOOT-Komponente (unten) jeweils für den gesamten ASSET-Zeitraum

Abb. 26 zeigt Karten der über den ASSET-Zeitraum gemittelten OmF zusammen mit den ebenfalls gemittelten OmA jeweils für die $\text{AOD}_{\text{Gesamt}}$, d.h. die Summe aus WASO, INSO und SOOT-Komponenten. Eine weitere Karte gibt die Anzahl der für jede Gitterzelle im ASSET-Zeitraum vorliegenden Beobachtungen wieder.

Die höchsten $\text{OmF}_{\text{Gesamt}}$ bis zu 0.3 treten in Spanien, Portugal und an einzelnen Gitterzellen des Mittelmeers auf. In Mittel- und Osteuropa dagegen überwiegen negative $\text{OmF}_{\text{Gesamt}}$ von bis zu -0.3. Über dem Atlantik ist das Bild uneinheitlich. Die $\text{OmA}_{\text{Gesamt}}$ -Karte zeigt eine homogene Verteilung von Werten um Null, d.h. es gelingt der Assimilation flächendeckend die $\text{OmF}_{\text{Gesamt}}$ zu berücksichtigen.

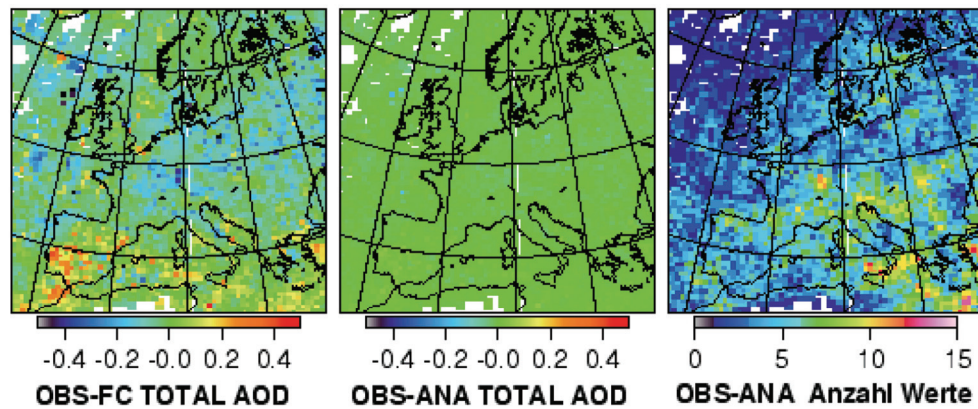


Abb. 26: Europakarte der für jede EURAD-Gitterzelle und für den ASSET-Zeitraum gemittelten OmF der AOD_{Gesamt} (links), der gemittelten OmA (Mitte) und der Anzahl der genutzten Werte pro Gitterzelle (rechts)

Abb. 53 in Anhang A zeigt die gleiche Darstellung, allerdings separiert nach den Aerosolkomponenten WASO, INSO und SOOT. Sowohl in der SOOT- als auch in der INSO-Komponente werden nur sehr kleine positive OmF beobachtet, die sich auf den Bereich Spanien/Portugal und das Mittelmeer beschränken. Negative OmF treten in der SOOT- und der INSO-Komponente nicht auf.

Abb. 27 und Abb. 28 zeigen die OmF_{WASO} in die einzelnen Monate unterteilt. Die Anzahl der Beobachtungen nimmt im Oktober und November durch die geringe Sonnenhöhe und die damit begrenzte Beobachtungsmöglichkeit signifikant ab.

Die maximalen positiven OmF_{WASO} treten in Portugal und Spanien v. a. im Sommer mit einem Maximum in Portugal im August auf, während in den Wintermonaten in dieser Region negative OmF_{WASO} vorliegen. Die Mittelmeerregion weist ebenfalls positive OmF_{WASO} in den Sommermonaten auf. Negative OmF_{WASO} gibt es in Osteuropa v. a. in den Monaten Juli, August und Oktober, während in Mitteleuropa der September und Oktober durch negative OmF_{WASO} auffallen.

Der Vergleich von $AOD_{EURAD-AERONET}$ zeigt eine deutliche Unterschätzung des Modells im Bereich Italiens (s. Kap. 4.5). Dieser Effekt kann in den OmF_{WASO} jedoch nur teilweise wieder gefunden werden. Die OmF_{WASO} in der Po-Ebene Norditaliens liegen in allen Monaten mit Ausnahme der Region um Venedig im August nahe Null bzw. sogar im negativen Bereich, d.h. das Modell weist höhere Werte als der Satellit auf. Im Mittelmeerraum südlich von Italien dagegen werden im Juli und August hohe positive OmF_{WASO} beobachtet, d.h. der Satellit ist in der Lage über Wasser die aus dem Vergleich von $AOD_{EURAD-AERONET}$ erwartete höhere AOD zu messen.

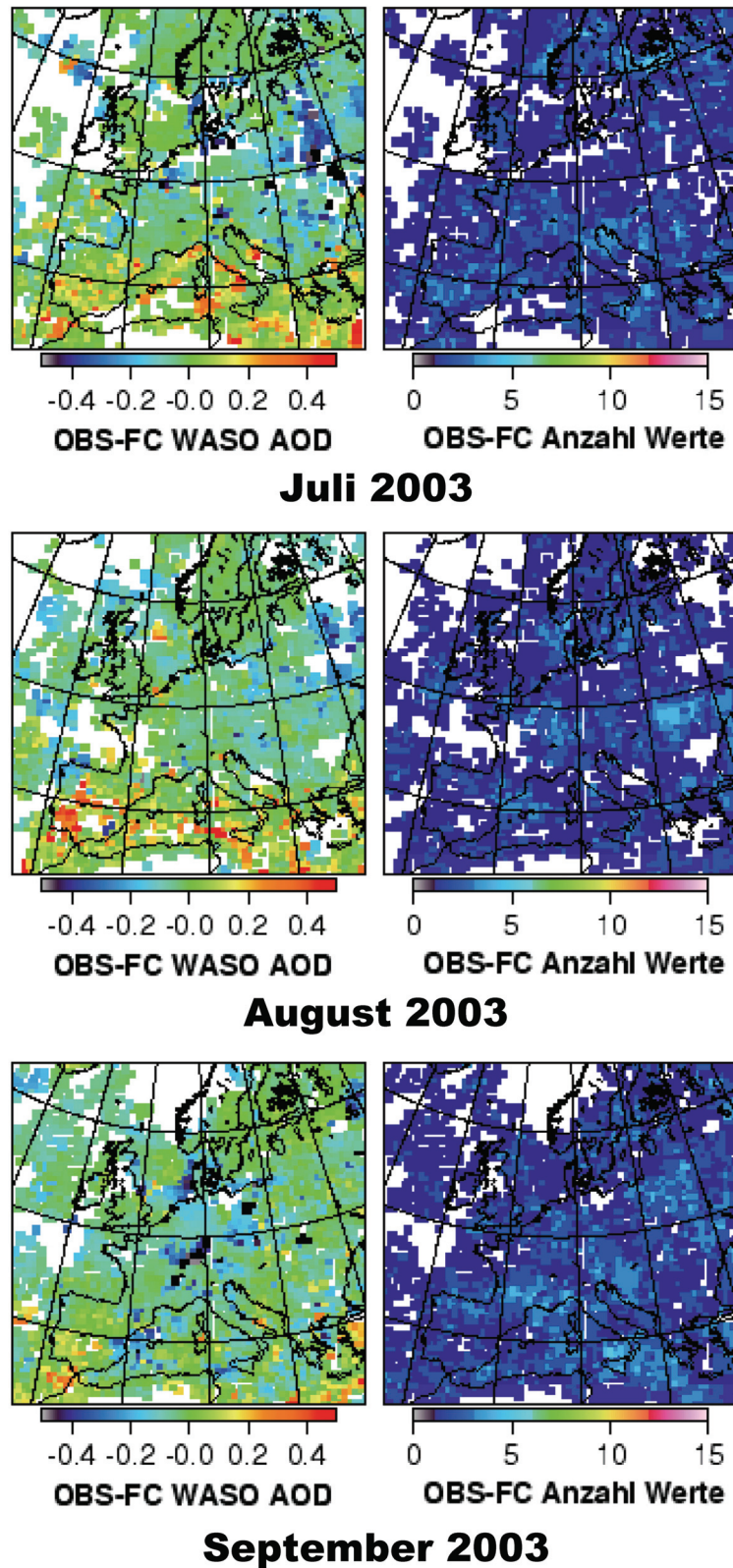


Abb. 27: Europakarte der für jede EURAD-Gitterzelle und für Juli (oben), August (Mitte) und September 2003 (unten) gemittelten OmF_{WASO} (links) und der Anzahl der Werte pro Gitterzelle (rechts)

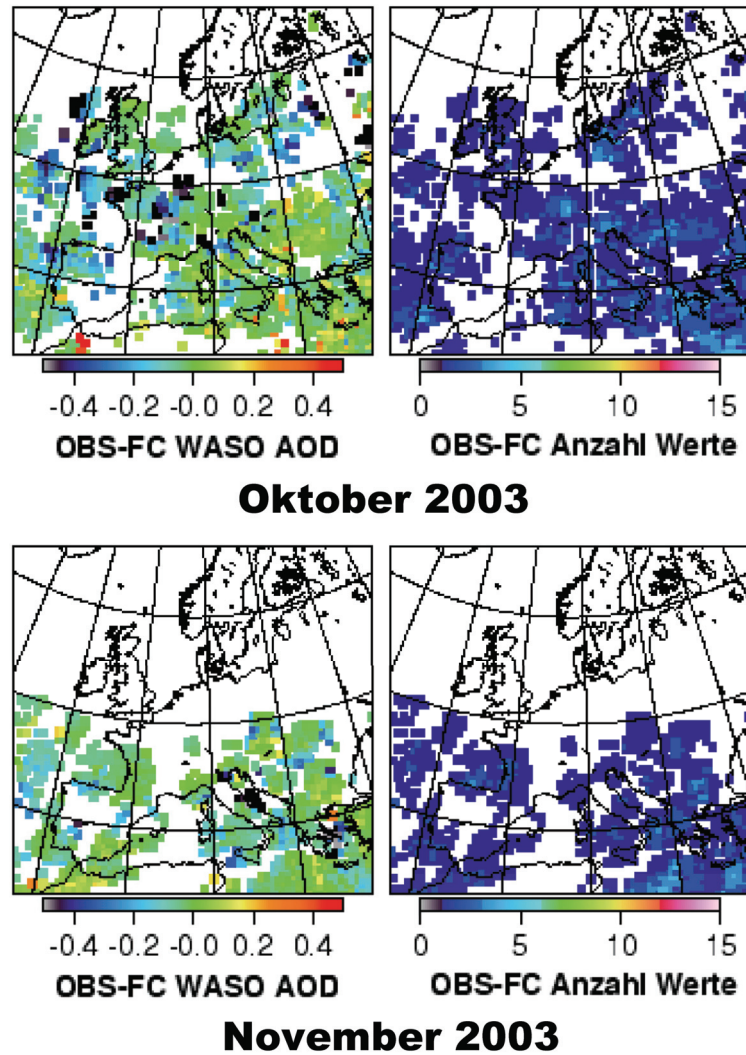


Abb. 28: Europakarte der für jede Gitterzelle und für Oktober (oben) und November 2003 (unten) gemittelten OmF_{WASO} (links) und der Anzahl der Werte pro Gitterzelle (rechts)

In der SOOT-Komponente (Abb. 29) tritt das Maximum der positiven OmF_{SOOT} im August südlich von Korsika und über Portugal/Spanien auf. Die in den Beobachtungen erhöhten WASO- und SOOT-Werte in Spanien sind das Resultat einer sehr intensiven Waldbrand-Saison in dieser Region im August 2003 und somit ein typisches Beispiel für eine außergewöhnliche Aerosolemission. Abb. 30 zeigt beispielhaft für den 14. August 2003 große verbrannte Flächen in der Mitte und im Süden Portugals. Infolge der statischen Emissionskataster kann diese Episode im Hintergrundfeld nicht modelliert werden. In den wesentlich kleineren Werten der OmA_{SOOT} -Karte zeigt sich der positive Einfluß der aerosoltypweisen Assimilation für diese Waldbrandepisode sehr gut.

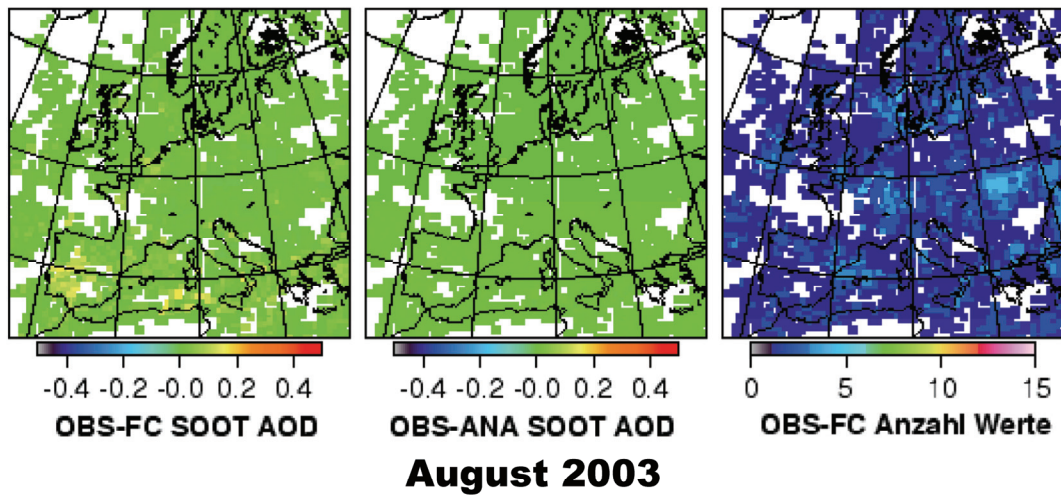


Abb. 29: Europakarte der für jede EURAD-Gitterzelle und August 2003 (rechts) gemittelten OmF_{SOOT} (links), der gemittelten OmA_{SOOT} (Mitte) und der Anzahl der genutzten Werte pro Gitterzelle (rechts)

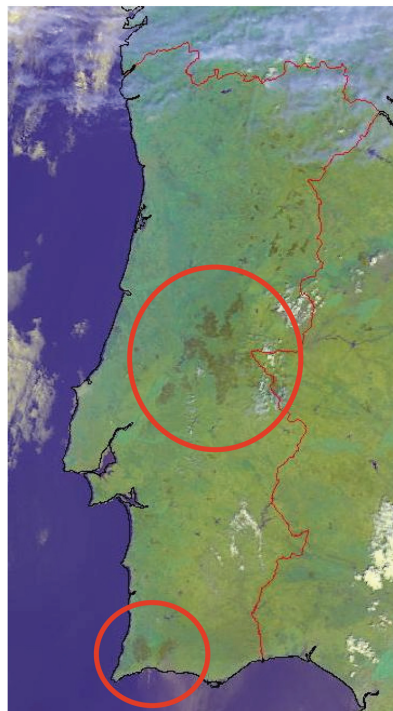


Abb. 30: Farbkomposit des NOAA-AVHRR-Instruments am 14. August 2003 zur Überflugszeit um 14:29 UTC. Verbrannte Flächen sind an ihrer dunklen Färbung in der Mitte und im Süden Portugals zu erkennen.

5 Fehleranalyse und Validierung des Analysefelds

5.1 Fehleranalyse

Nach verschiedenen Sensitivitätsstudien (Kap. 3) werden nun folgende Fragen untersucht:

- Welchen Einfluß hat die Sensitivität des **H**-Operators bzgl. der Größenverteilung des Aerosols im realen Fall des ASSET-Zeitraums?
- Wie groß sind die Anteile der einzelnen Aerosolklassen an der AOD des EURAD-Modells?
- Wie groß ist der Fehler in der AOD infolge des Fehlens von maritimem und mineralischem Aerosol in der verwendeten EURAD-Modellversion?

Umrechnung in SYNAER-äquivalente Größenverteilungen

Kapitel 3.4 beschreibt die Notwendigkeit der Umrechnung der EURAD-Größenverteilung in eine SYNAER-äquivalente Größenverteilung zur Bestimmung einer mit dem Satelliten vergleichbaren AOD. Es stellt sich nun die Frage, wie sehr sich das AOD-Ergebnis verändert, wenn auf die Umrechnung in SYNAER-äquivalente Größenverteilungen nach Gl. (26) verzichtet wird. In Kap. 3.4 wurde dies durch eine systematische Variation von D_m analysiert. Nun wird dies für ein realistisches Ensemble von im Modell vorkommenden D_m untersucht. Gitterzellen, an denen $D_{m,EURAD}$ dem in der Satellitenmessung angenommenen $D_{m,SYNAER}$ entspricht, tragen kaum oder überhaupt nicht zu Unterschieden bei, während Gitterzellen mit im Modell sehr unterschiedlichem $D_{m,EURAD}$ Unterschiede erwarten lassen. Da die $D_{m,EURAD}$ je nach meteorologischer und aerosolphysikalischer Situation variieren, kann diese Frage nicht theoretisch beantwortet werden. Stattdessen wird anhand des ERS-2-Testdatensatzes August - Dezember 1997 die Größenordnung des Fehlers abgeschätzt.

Abb. 31 zeigt das Histogramm der Differenzen $AOD_{\text{ohne Umrechnung}} - AOD_{\text{mit Umrechnung}}$ des Modells für 8956 Gitterzellen. Mit Ausnahme von Einzelfällen weisen alle Gitterzellen eine positive Differenz auf, d.h. für \mathbf{x}_b würde sich ohne die Umrechnung auf SYNAER-äquivalente Größenverteilungen eine höhere AOD ergeben. Dies erklärt sich durch den hohen Anteil der WASO-Komponente an AOD_{EURAD} . Der modellierte Akkumulationsmode ist typischerweise größer als die WASO-Größenverteilung (vgl. Abb. 8) und somit ist auch β_{ext} größer wenn auf eine Umrechnung verzichtet wird.

Insgesamt haben 35 % der Werte eine Differenz $AOD_{\text{ohne Umrechnung}} - AOD_{\text{mit Umrechnung}}$ von kleiner als 0.01, 82 % der Werte liegen innerhalb eines 0.05-Unterschieds und 96 % aller Fälle zeigen einen Unterschied von kleiner als 0.1. In Anbetracht der Tatsache, dass für

Satellitenmessungen derzeit eine maximale Genauigkeit von 0.1 (RMSE) angestrebt wird (Holzer-Popp et al., 2002a), kann dieser Fehler vorläufig vernachlässigt werden. Auch erklärt dieser Effekt nicht die generelle Unterschätzung der AOD_{EURAD} im Vergleich mit AERONET, da er zu klein ist.

Es muss jedoch berücksichtigt werden, dass beide Testdatensätze (1997 und 2003) im Modell durch die WASO-Komponente dominiert werden. Die Substanzen der $EURAD_{WASO}$ -Komponente werden im Nukleations- und im Akkumulationsmode modelliert und entsprechen der $SYNAER_{WASO}$ -Komponente weitgehend. Starke AOD-Abweichungen sind erst zu erwarten, wenn sich die Größenverteilungen in Modell und Satellitenmessung deutlich unterscheiden.

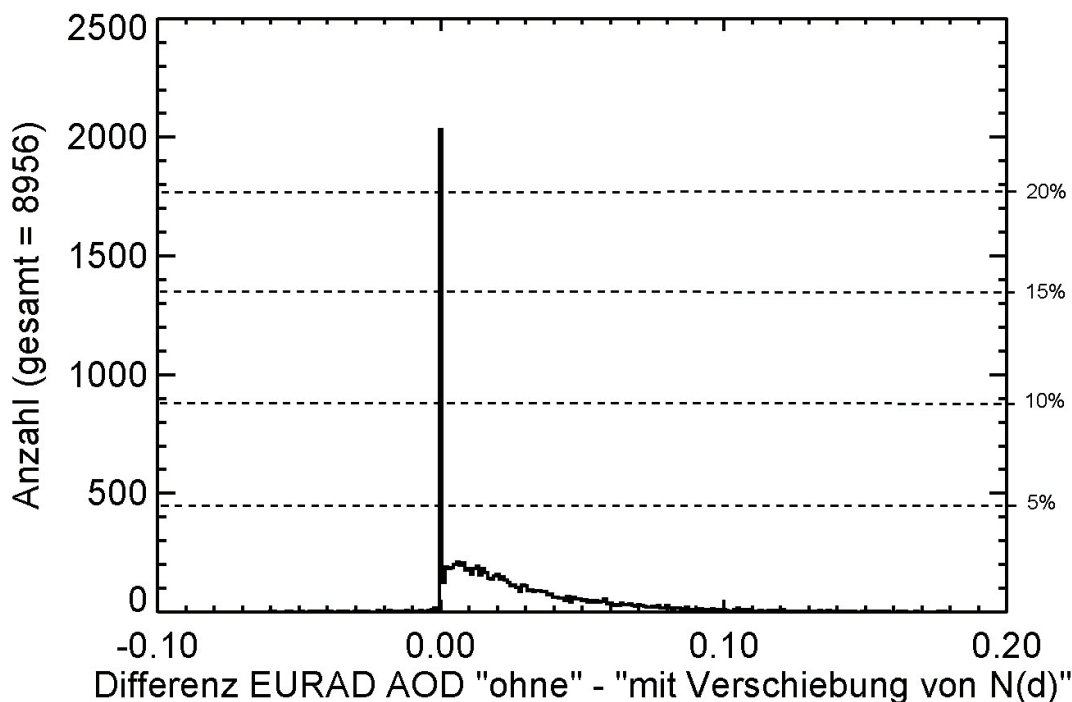


Abb. 31: Histogramm von Differenzen ($AOD_{\text{ohne } N\text{-Umrechnung}} - AOD_{\text{mit } N\text{-Umrechnung}}$) falls die Verschiebung der Modellgrößenverteilung $N(D)$ auf eine SYNAER-äquivalente Größenverteilung angewandt bzw. nicht angewandt wird.

Dies ist z.B. bei $SYNAER_{INSO}$ und den primären organischen Partikeln im EURAD-Akkumulationsmode der Fall. Da aber die Substanzen der $EURAD_{INSO}$ -Komponente nur mit sehr kleinen AOD-Werten beitragen (Kap. 4.6), ist die Auswirkung in diesem Fall vernachlässigbar. Falls in der Zukunft große Partikel mineralischen Staubs oder aus Seesalz im Modell eingefügt werden, muss für jede Gittersäule überprüft werden, ob die im Modell vorliegende Grobmode den SYNAER-Größenverteilungen für MITR und SSAM/SSCM in ausreichendem Maße entspricht.

Bedeutung verschiedener Aerosolklassen in EURAD

Aus dem EURAD-Modell können insgesamt 13 verschiedene Aerosolklassen (H_2SO_4 , $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$, NH_4NO_3 , HNO_3 , primär organischer Kohlenstoff, elementarer Kohlenstoff, primäres anthropogenes Aerosol im Akkumulationsmode, sonstiges anthropogenes Aerosol im Grobmode und Folgeprodukte von Aromaten, Alkanen, Alkenen, α -Pinen und Limonen) und der Wasseranteil der Aerosolpartikel separat mit optischen Eigenschaften beschrieben werden. Die Modellierung der sekundären organischen Substanzen (Schell, 2000) ist aufwändig und wurde im operationellen Modelllauf erst nach dieser Studie implementiert. Der Anteil der Massenkonzentrationen dieser Aerosolklassen an der gesamten Massenkonzentration ist gering und es stellt sich daher die Frage, ob diese Substanzen modelliert werden müssen.

Für den Testdatensatz August - Dezember 1997 mit 9792 Gitterzellen wird untersucht, welchen Anteil die einzelnen Klassen an der AOD haben. Es reicht jedoch nicht aus, die Massenkonzentration einer einzelnen Aerosolklasse im Modell auf Null zu setzen. Die dann nötige Anpassung der Momente der Größenverteilung würde zu einer Verschiebung der genutzten Partikelzahlen führen und das Ergebnis verfälschen. Daher wird angenommen, dass die zu analysierende Klasse zwar weiterhin in der Massenbilanz vorhanden ist, jedoch keine Streu- und Absorptionswirkung mehr aufweist. Hierfür wird der Brechungsindex der k -ten Aerosolklasse auf $m = (1.01 + i0.0)$ gesetzt. Als Ergebnis liegt für jede Klasse k eine AOD des Restaerosols vor ($\text{AOD}_{\text{Rest},k}$). Die Differenz $\text{AOD}_{\text{Rest},k} - \text{AOD}_{\text{EURAD}}$ wird als Histogramm des prozentualen Anteils am Referenzfall $\text{AOD}_{\text{EURAD}}$ ausgewertet.

An der AOD sind die Folgeprodukte der Limonene und der α -Pine mit typischerweise bis zu 5-10 % (Abb. 33) und in Einzelfällen deutlich über 20 % vertreten. Die Folgeprodukte der Alkane (Abb. 32) und der Aromate erreichen Werte bis zu 5 %, während die Folgeprodukte der Alkene nur mit 0-1 % zur AOD beitragen. Zumindestens die Limonene, die α -Pine, die Aromate und die Alkane sollten daher auf jeden Fall modelliert werden.

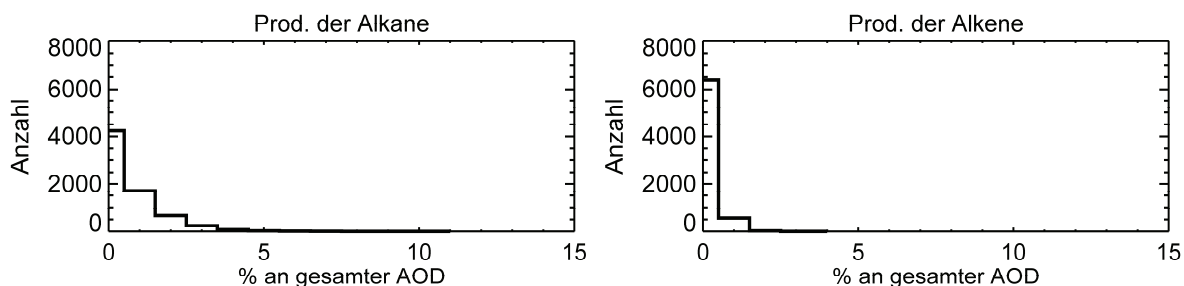


Abb. 32: Prozentualer Anteil der Produkte der Alkane und Alkene an der $\text{AOD}_{\text{EURAD},550\text{nm}}$

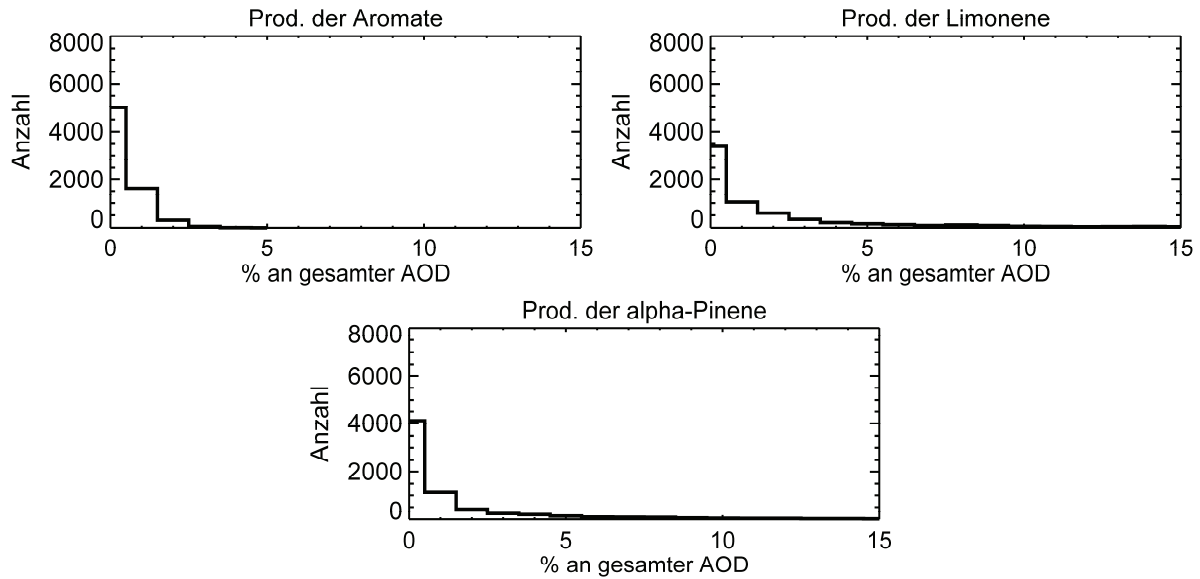


Abb. 33: Prozentualer Anteil der Produkte der Aromate, des Limonen und des α -Pinen an der $AOD_{EURAD,550nm}$

Auswirkung des Fehlens maritimen und mineralischen Aerosols in EURAD

In der verwendeten EURAD-Version wurden maritimes und mineralisches Aerosol nicht modelliert. Im Vergleich zu den Beobachtungen lässt sich abschätzen, wie groß der dadurch bedingte Fehler ist. Eine getrennte Abschätzung für das maritime und das mineralische Aerosol kann allerdings auf der Basis der vorliegenden ENVISAT-SYNAER-Beobachtungen nicht durchgeführt werden, da SYNAER in der vorliegenden Version 1.8 zwischen den großen Seesalz- und Staubpartikeln nicht ausreichend genau trennen kann (Holzer-Popp, 2006). Im Folgenden wird zwischen der mit den modellierten Aerosolklassen vergleichbaren Satellitenbeobachtung als Summe von WASO-, INSO- und SOOT-Komponente

$$AOD_{WIS} = AOD_{WASO} + AOD_{INSO} + AOD_{SOOT} = O_{WIS} \quad (33)$$

und der gesamten Satellitenbeobachtung als Summe von WASO-, INSO-, SOOT-, SEAS- und MITR-Komponente

$$AOD_{TOTAL} = AOD_{WASO} + AOD_{INSO} + AOD_{SOOT} + AOD_{SEAS} + AOD_{MITR} = O_{TOTAL} \quad (34)$$

unterschieden. Abb. 34 zeigt die Histogramme der $O_{TOTALmF}$ (Punkte) und der $O_{TOTALmA}$ (Linie) zusammen mit den O_{WISM} (Striche).

Im Gegensatz zu den einzelnen O_{mA} von WASO-, SOOT- und INSO-Komponenten fällt hier eine deutliche Schiefe hin zu positiven $O_{TOTALmA}$ auf. Der Unterschied der beiden Verteilungen von $O_{TOTALmA}$ und O_{WISM} beschreibt den Einfluss des Fehlens von maritimen und mineralischem Aerosol in dieser EURAD-Version.

Abb. 35 zeigt die Differenz $AOD_{TOTAL} - AOD_{WSI}$ als kumulative Verteilungsfunktion. Es treten in 65 % der Fälle vernachlässigbare $AOD_{TOTAL} - AOD_{WSI}$ kleiner als 0.01 auf. In 25 % der Fälle jedoch beträgt $AOD_{TOTAL} - AOD_{WSI}$ zwischen 0.01 und 0.1 und in weiteren 7 % der Fälle 0.1 bis 0.2. $AOD_{TOTAL} - AOD_{WSI}$ größer als 0.2 werden für 3 % der Fälle beobachtet. Die Größenordnung dieses Ergebnisses entspricht qualitativ der von Collins et

al. (2001) für die INDOEX-Region im Pazifik modellierten Verteilung der Summe von Seesalz- und Staubaerosolen mit einer AOD bis zu 0.17.

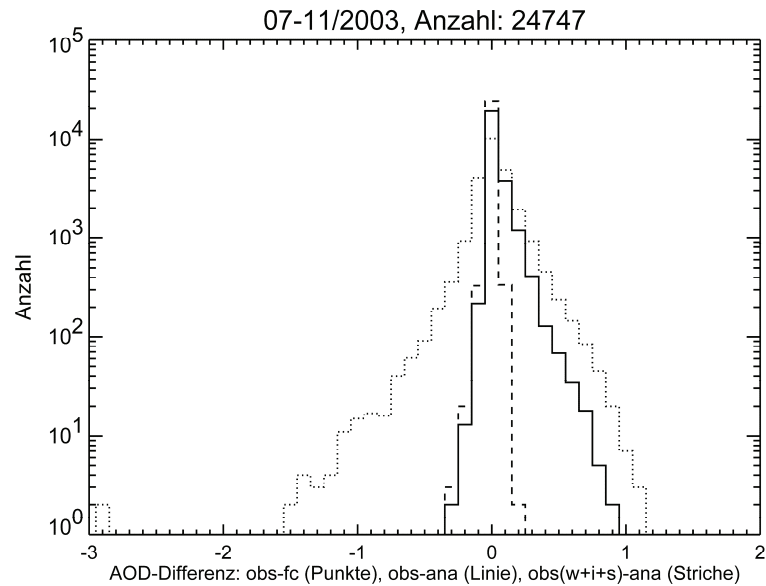


Abb. 34: Histogramm der $O_{TOTALmF}$ (Punkte), der $O_{TOTALmA}$ (Linie) und der O_{WISMA} (Striche) für den gesamten ASSET-Zeitraum

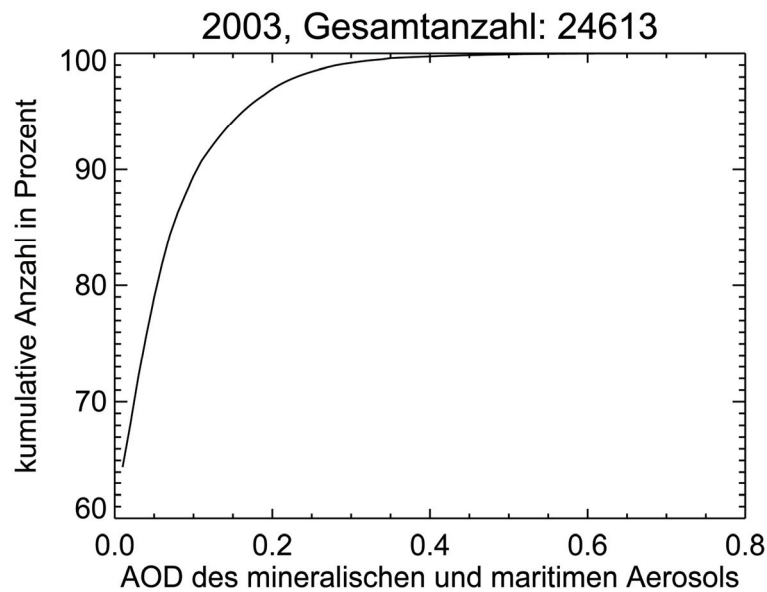


Abb. 35: Kumulative Verteilung der Differenz $O_{TOTAL} - O_{WSI}$

5.2 Validierung der aerosoptischen Dicke

Im Folgenden werden die AOD des EURAD-Hintergrundfelds (AOD_{x_b}) und des Analysefelds (AOD_{x_a}) jeweils mit den AERONET-Messungen für den ASSET-Zeitraum verglichen (Abb. 36). Für ihre Umgebung nicht repräsentative AERONET-Stationen (Erdemli, Türkei wegen der Nähe zum türkischen Küstengebirge; Palaiseau und Fontainebleau, Frankreich, wegen ihrer Lage im Ballungsraum Paris; Rom-Tor Vergata, Italien, wegen ihrer Lage an einem römischen Verkehrsknotenpunkt; Hamburg, Deutschland, wegen ihrer Küstennähe) wurden dabei ausgeschlossen.

Durch eine Analysefeld-Validierung wird untersucht, ob sich durch die Datenassimilation ein positiver Einfluß der Satellitendaten nachweisen lässt. Dies kann nur für vom Hintergrund sich unterscheidende Beobachtungen erwartet werden. Daher werden nur Gitterzellen in der Nähe von Beobachtungen mit einem Analyseinkrement $\Delta \mathbf{x}_a \neq 0$ berücksichtigt. Dieses Kriterium schließt ebenfalls Fälle aus, in denen das Hintergrundfeld mit der Beobachtung übereinstimmt. Dies ist jedoch nur bei 0.04% der Beobachtungen gegeben. Außerdem sind diese Fälle für den Nachweis einer Verbesserung durch die Assimilation nicht relevant.

Damit wird auch der Tatsache Rechnung getragen, dass die raum-zeitliche Beobachtungsdichte bei ENVISAT noch zu gering ist, um im gesamten Modellgebiet eine signifikante Wirkung der Assimilation erwarten zu können. Bei einer Korrelationslänge von 0.5 Gitterzellen beträgt der Einflußradius max. 100 km.

Im Vergleich zu den zur Validierung des Hintergrundfelds genutzten 2268 Messungen ist die Anzahl der 189 Koinzidenzen deutlich geringer. Der systematische Fehler für $AOD_{x_b-AERONET}$ beträgt -0.14 und kann auf -0.12 reduziert werden, $\sigma_{x_b-AERONET}$ und $\sigma_{x_a-AERONET}$ bleiben jedoch bei 0.16. Eine t-Test-Analyse zeigt, dass diese Veränderung jedoch nicht signifikant ist.

Wird $|\Delta \mathbf{x}_a| > 0.05$ verlangt und damit implizit die räumliche Nähe zu den Beobachtungen reduziert, so bleiben 53 Koinzidenzen, bei denen sich für $AOD_{x_b-AERONET}$ E_s von -0.15 auf -0.07 für $AOD_{x_a-AERONET}$ verbessert (Abb. 36). Der $RMSE_{x_b-AERONET}$ verbessert sich von 0.25 auf einen $RMSE_{x_a-AERONET} = 0.20$, $\sigma_{x_b-AERONET}$ und $\sigma_{x_a-AERONET}$ bleiben jedoch mit 0.2 und 0.19 fast gleich. Eine Untersuchung der Nullhypothese H_0 , dass Analyse- und Hintergrundfeld aus derselben Grundgesamtheit stammen, führt zur Ablehnung von H_0 bei einem Signifikanzniveau kleiner 5%. Somit zeigt sich eine signifikante Verbesserung des systematischen Fehlers in der AOD-Analyse durch den neuen **H**-Operator und die Assimilation.

Der stationsweise Vergleich zeigt eine deutliche Verbesserung des RMSE an den Stationen IMC_Oristano (0.5 auf 0.22), El-Arenosillo (0.23 auf 0.15), Oostende (0.3 auf 0.23), Dunkerque (0.19 auf 0.13) und Forth_Crete (0.11 auf 0.05). An den weiteren Stationen Lampedusa, Evora und Venise verbessert sich der RMSE um 0.02 bis 0.03, während er sich an den Stationen Toulouse und ISDGM_CNR um -0.03 verschlechtert. Es fällt auf, dass an fünf dieser acht durch die Assimilation merkbar veränderten und sich verbessernden Stationen häufig ein Einfluß durch Staubstürme beobachtet wird (Breitkreuz, 2008). Dies motiviert eine entsprechende Fallstudie in Kap. 6.3.

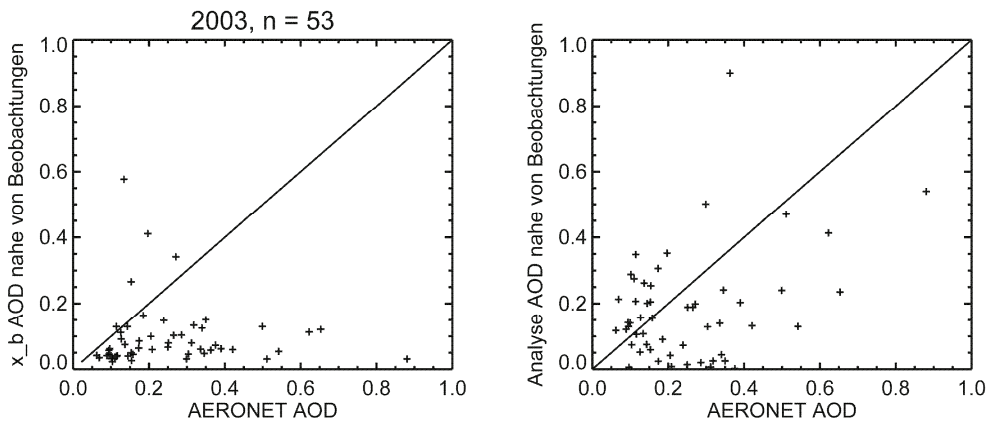


Abb. 36: Vergleich von $AOD_{x_b-AERONET}$ (a) und $AOD_{x_a-AERONET}$ (b)
Dargestellt ist der ASSET-Zeitraum mit insgesamt 53 Koinzidenzen und einem $|\Delta \mathbf{x}_a| > 0.05$.

Werden nur die durch die Assimilation erheblich veränderten Fälle mit $|\Delta x_a| > 0.1$ betrachtet, so verbessert sich E_s von -0.18 auf -0.02 und der RMSE von 0.3 auf 0.21. Auch hier bleibt die Streuung mit 0.25 und 0.22 erhalten. Diese starke Streuung kann teilweise als Folge des Vergleichs von Punktmessung mit Flächenintegralen interpretiert werden und entspricht der Größenordnung der Streuung ($\sigma = 0.16$) im Vergleich der Beobachtungen mit AERONET-Messungen.

5.3 Vergleich mit dem UK Smoke and Sulphur Dioxide Network

Für die Validierung der Massenkonzentrationen der Klassen elementaren bzw. organischen Kohlenstoffs mit klassen-spezifischen Bodenmessungen gibt es kein europaweites Meßnetz. Die Vielzahl der in den einzelnen Staaten verwendeten Meßverfahren ist nicht miteinander vergleichbar (EMEP, 2007). In Großbritannien gibt es mit dem UK Smoke and Sulphur Dioxide Network ein Meßnetz, das mit einem einheitlichen Standard erzeugte Messungen in für eine statistische Auswertung ausreichender räumlicher und zeitlicher Auflösung bereitstellt.

Das EURAD-Hintergrundfeld der Summe von elementarem und organischem Kohlenstoff ($BC_{x,b}$) und das Analysefeld ($BC_{x,a}$) wurde für den ASSET-Zeitraum mit diesen ‚Black Smoke‘-Massenkonzentrationsmessungen (UKBC) verglichen. Da im Rahmen dieser Studie kein sequentieller Assimilationslauf vorliegt, werden 10 UTC-Modellwerte mit den Tagesmitteln der Bodenmessungen verglichen. Da es sich um Hintergrundstationen handelt, kann ein evt. in Quellnähe vorhandener systematischer Tagesgang der Massenkonzentrationen vernachlässigt werden. Ebenfalls vernachlässigt werden muss eine eventuelle Variabilität im Laufe des Tages, die somit einen Teil der beobachteten Streuung ausmacht.

Von insgesamt 717 Koinzidenzen zwischen in-situ-Bodenmessungen und dem Analysefeld weisen 231 Fälle ein Analyseinkrement im AOD-Raum $|\Delta x_{a,soot}| > 0.001$ und 81 Fälle ein $|\Delta x_{a,soot}| > 0.01$ auf. Für $|\Delta x_{a,soot}| > 0.001$ wird durch die Assimilation eine E_s -Reduktion von -3.66 auf -1.38 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ erreicht. Allerdings nimmt die Streuung σ durch einzelne extreme Überschätzungen um bis zu 22 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ stark von 3.22 auf 5.37 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ zu, was insgesamt zu einer Verschlechterung des RMSE von 4.88 auf 5.54 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ führt. Abb. 37 zeigt diese Ausreißer als nur im Analysefeld vorhandenen positiven Ast des Histogramms.

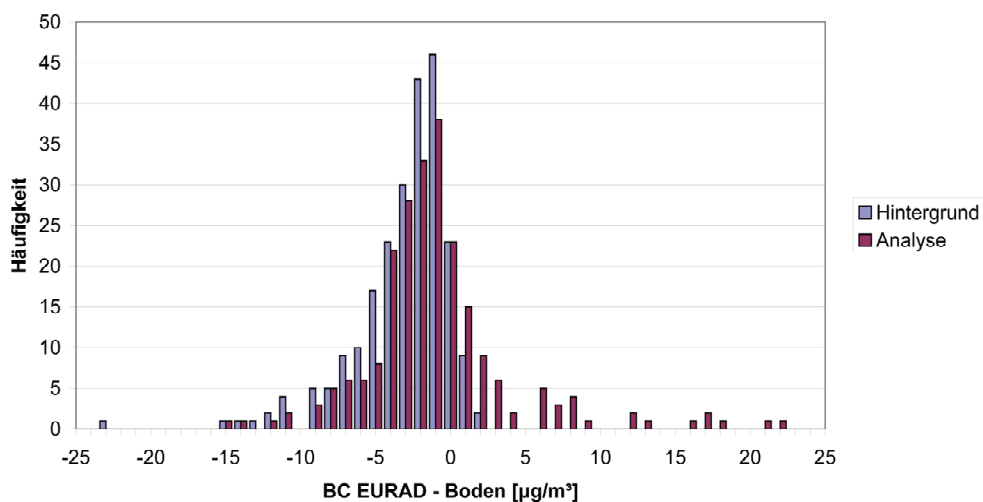


Abb. 37: Histogramm der Differenzen $BC_{x,b-UKBC}$ und $BC_{x,a-UKBC}$. Dargestellt sind Vergleiche zu Messungen des UK Black Smoke Netzwerks für den ASSET-Zeitraum mit 231 Koinzidenzen und einem $|\Delta x_{a,soot}| > 0.001$.

Eine Einzelfalluntersuchung dieser Ausreißer mit 300m aufgelösten MODIS-Farbkompositen zeigt, dass alle 22 Ausreißer mit Differenzen zwischen $BC_{x,a} - BC_{\text{Boden}} > 5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ am Rande von bewölkten Regionen liegen bzw. eine kleinräumige Bewölkung vorliegt. Es ist zu vermuten, dass ein Wolkenfehler in der nächstgelegenen ENVISAT-Satellitenbeobachtung vorliegt, der durch die Qualitätskontrolle der Beobachtungen nicht automatisch erkannt werden kann. Teilweise haben die für die Ausreißer verantwortlichen Satellitenpixel einen nur sehr kleinen Bedeckungsgrad von einigen Prozent, teilweise ist zwar der Bedeckungsgrad hoch – die Kontrollparameter Mehrdeutigkeits- oder Fitfehler sind jedoch unauffällig. Ein weiteres Kriterium für eine automatische Qualitätskontrolle der Beobachtungen lässt sich aus diesen Fällen nicht ableiten.

Werden diese Ausreißer in der Auswertung manuell entfernt, so bleiben 209 Fälle, für die sich E_s von -3.63 auf -2.73 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ reduziert, die Streuung σ von 3.24 auf 3.08 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ abnimmt und somit der RMSE von 4.87 auf 4.12 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Allerdings bewegt sich diese Veränderung in der Größenordnung der für das Bodennetzwerk angegebenen Messunsicherheit von 30%. Die Nullhypothese H_0 , dass Analyse- und Hintergrundfeld aus derselben Grundgesamtheit stammen, kann jedoch mit einem Signifikanzniveau kleiner 1% abgelehnt werden. Damit konnte gezeigt werden, dass die Assimilation der SYNAER-Komponente SOOT einen positiven Effekt auf das EURAD-Analysefeld hat und insbesondere E_s reduziert.

Die im Vergleich zur Messunsicherheit hohe Streuung dieses Vergleichs kann teilweise als eine Folge des Skaleneffekts im Vergleich von Punkt- und flächenintegrierenden Messungen interpretiert werden. Für die rund um die Bucht von Gibraltar gelegenen spanischen Stationen Algeciras, La Linea und Los Barrios liegen in der COST633-Datenbank für den 15.9.2003 Messungen der EC+OC-Konzentration vor, die die mögliche Variabilität innerhalb einer EURAD-Gitterzelle in einem Einzelfall demonstrieren. Während in Algeciras 5.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ gemessen wurden, sind es in La Linea nur 2.3 und in Los Barrios nur 1.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Im Mittel entspricht dies 3.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, die vom Hintergrundfeld mit 0.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ nicht erreicht und vom Analysefeld mit 4.13 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ leicht übertroffen werden. Im Mittel verbessert die Assimilation für diese 3 Stationen das Analysefeld erfolgreich, im Einzelvergleich würde jedoch eine deutliche Unter- bzw. Überschätzung von -20 bis 120% vorliegen.

5.4 Vergleich mit dem EMEP-Netzwerk

Das EURAD-Hintergrundfeld ($N+S_{x,b}$) und das Analysefelds ($N+S_{x,a}$) wurden für den ASSET-Zeitraum in einem typweisen Vergleich mit den EMEP-Massenkonzentrationsmessungen ($N+S_{\text{EMEP}}$) von SO_4 , NH_4 und NO_3 verglichen. Die in-situ-EMEP-Messungen liegen in den Einheiten $\mu\text{g S}/\text{m}^3$ und $\mu\text{g N}/\text{m}^3$ vor, während in EURAD die Einheit $\mu\text{g}/\text{m}^3$ verwendet wird. Daher wird mit Hilfe der molaren Massen die EURAD-Massenkonzentration in $\mu\text{g S}/\text{m}^3$ und $\mu\text{g N}/\text{m}^3$ umgerechnet. Außerdem sollen die wasserlöslichen Substanzen gemeinsam betrachtet werden, da Beobachtungen nur für die Aerosolkomponente WASO und nicht für die einzelnen anorganischen Ionen vorliegen und eine Validierung des Analysefelds sich auf die gesamte WASO-Komponente beziehen sollte. Daher werden die Summen der Massenkonzentrationen von SO_4 , NH_4 und NO_3 verglichen, unabhängig ob es sich im Einzelnen um $\mu\text{g S}/\text{m}^3$ oder $\mu\text{g N}/\text{m}^3$ handelt. Auch die EMEP-Messungen liegen als Tagesmittelwerte vor und werden mit 10 UTC-Modellwerte verglichen. Da es sich auch in diesem Netzwerk um Hintergrundstationen handelt, kann ein evt. in Quellnähe vorhandener systematischer Tagesgang der Massenkonzentrationen vernachlässigt werden. Ebenfalls vernachlässigt werden muss eine aufgrund der synoptischen Großwetterlage entstehende Variabilität im Laufe des Tages, die somit einen Teil der beobachteten Streuung ausmacht.

Insgesamt lassen sich für den ASSET-Zeitraum 165 Koinzidenzen an 16 Stationen in Ungarn, Italien, Litauen, den Niederlanden, Norwegen, Polen, Russland und der Türkei finden. Von diesen haben 81 Koinzidenzen ein $|\Delta \mathbf{x}_{a,waso}| > 0.01$. Für diese verringert sich der E_s von 2.11 auf 1.38 $\mu\text{g (N+S)}/\text{m}^3$, die Streuung σ von 3.7 auf 3.43 $\mu\text{g (N+S)}/\text{m}^3$ und der RMSE von 4.27 auf 3.7 $\mu\text{g (N+S)}/\text{m}^3$ (Abb. 38). Damit kann ebenfalls ein positiver Einfluß infolge der Assimilation der SYNAER-Komponente WASO festgestellt werden.

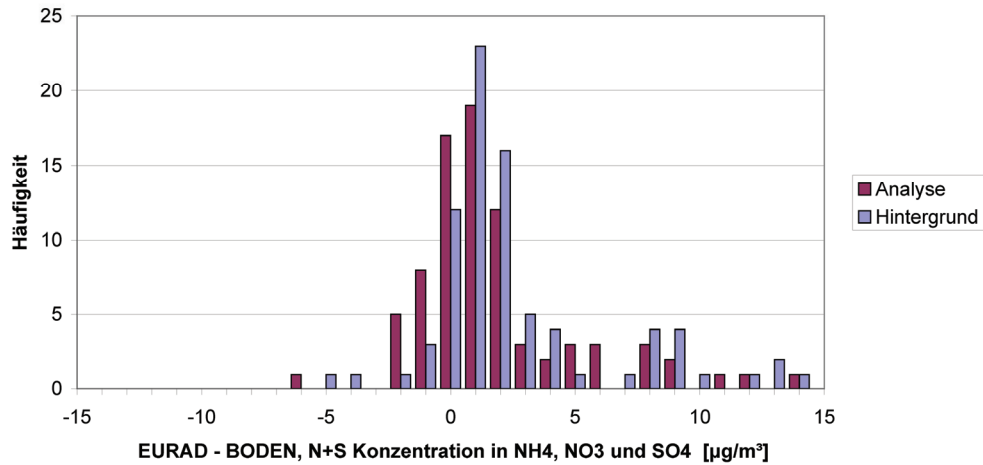


Abb. 38: Histogramm der Differenzen $(N+S)_{x_b-EMEP}$ und $(N+S)_{x_a-EMEP}$. Dargestellt sind Vergleiche mit EMEP-Bodenmessungen im ASSET-Zeitraum mit 81 Koinzidenzen und einem $|\Delta \mathbf{x}_{a,waso}| > 0.01$.

6 Fallbeispiele

6.1 Fallbeispiel 15. August 1997

Im diesem Kapitel werden zunächst die einzelnen Zwischenschritte des **H**-Operators zur Bestimmung der $AOD_{x,b}$ des Modells und der Assimilation von Satellitenbeobachtungen am Beispiel des 15.8.1997 gezeigt. Dieser Tag ist durch weitgehenden Hochdruckeinfluß über Europa gekennzeichnet. Einzig eine bereits abgeschwächte Okklusionsfront zieht sich von einem Tiefdruckgebiet mit dem Zentrum bei Island über die Nordsee, die deutschen Mittelgebirge und dann westlich bis zur Biskaya. Diese Störung ist mit einem schmalen Band tiefliegender Bewölkung über Norddeutschland bis hin zum Rand der Mittelgebirge verbunden. Satellitenbilder der NOAA-Wettersatelliten zeigen, dass es im Laufe des Tages zu konvektiver Bewölkung in Teilen Nordspaniens, Westfrankreichs und Osteuropas kommt. Weitestgehend ist Europa jedoch wolkenfrei.

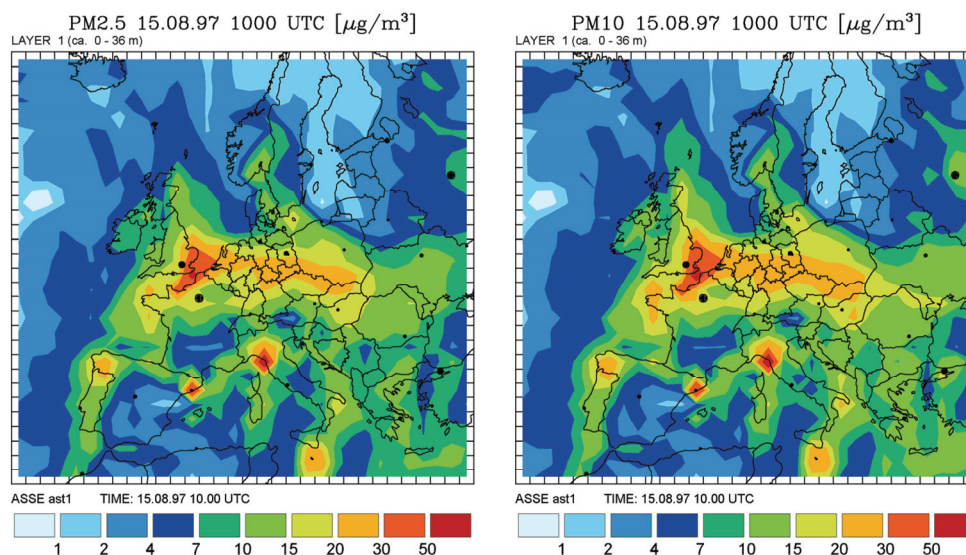


Abb. 39: $PM_{2.5}$ und PM_{10} des EURAD-Modells für 10 UTC am 15.8.1997 (Quelle: EURAD)

Das Standard-Ausgabeformat des EURAD-Modells enthält die Partikelkonzentration PM10 bzw. PM2.5 (Abb. 39). Das modellierte Aerosolfeld wird durch ein PM-Maximum geprägt, das sich von Nordfrankreich über den Ärmelkanal bis ins südliche Polen zieht. Maximale Werte bis über $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in PM2.5 und PM10 werden im Ärmelkanal erreicht. Lokale Maxima mit Werten von teilweise ebenfalls bis zu $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ liegen im Bereich der Städte Porto (Portugal), Barcelona (Spanien) und Genua/Florenz (Italien). Weitere lokale Maxima treten im Mittelmeer südlich von Sizilien und Brindisi (Italien) auf. Typische Werte der PM2.5 Konzentration über dem Kontinent liegen bei $7 - 15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und bei $1 - 7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ über dem Ozean. Insbesondere an der Atlantikküste Europas ist ein deutlicher Gradient in der Massenkonzentration senkrecht zum Verlauf der Küstenlinie sichtbar, während die Situation über dem Mittelmeer und in Skandinavien von kleinräumigeren horizontalen Gradienten geprägt ist. Die Verteilungen der Massenkonzentration von PM2.5 und PM10 sind annähernd gleich, d.h. es liegen vor allem kleine Partikel vor.

Für die Bestimmung der $\text{AOD}_{\text{EURAD}}$ werden die einzelnen Aerosolklassen separat verwendet. Abb. 40 zeigt beispielhaft die Massenkonzentrationen von SO_4 , NH_4 , NO_3 , elementarem Kohlenstoff, biogenen sekundären organischen Substanzen und das primäre Feinaerosol im Grobmode in der untersten Modellschicht von $0 - 36 \text{ m}$ über dem Boden ebenfalls für den 15. August 1997 um 10 UTC. Den größten Anteil hat das Nitrat mit bis zu $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$, danach folgen Sulfate mit bis zu $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$, das Ammonium mit Werten bis $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$, die biogenen sekundären Substanzen und das primäre Feinaerosol mit Werten bis $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und mit Werten unter $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ der elementare Kohlenstoff.

Das PM2.5-Maximum im Ärmelkanal wird durch Maxima von Nitraten und Ammonium sowie in kleineren Anteilen von primärem Feinaerosol und elementarem Kohlenstoff verursacht. Biogene sekundäre Substanzen und Sulfate tragen kaum bei.

Sulfate dagegen sind Hauptbestandteil der lokalen PM2.5-Maxima östlich von Porto und südlich von Sizilien. Sulfate sind auch Hauptverursacher der bandförmigen PM2.5-Struktur von Nordportugal über den Ärmelkanal bis ins südliche Polen und der Verteilung über den Ozeanen. Die Regionen um Barcelona und Genua/Florenz dagegen werden durch Emissionen von Nitrat und Ammonium dominiert.

Der Vergleich der räumlichen Verteilungen des elementaren Kohlenstoffs und des primären Feinaerosols zeigt eine fast parallele räumliche Verteilung der lokalen Minima und Maxima dieser Aerosolklassen. Dies entspricht der im Modell existierenden Kopplung beider Emissionsstärken (s. Kap. 2.4). Lokale Maxima treten in den Regionen östlich von London, Barcelona, Genua/Florenz und den Regionen südlich von Brindisi und Sizilien auf.

Eine von den anderen Aerosolklassen sehr verschiedene räumliche Verteilung weist die Klasse der biogenen sekundären Substanzen auf. Maxima treten über Skandinavien, nordöstlich von Moskau, in Polen und mit kleineren Anteilen im Schwarzwald, im westlichen Alpenraum, in den Pyrenäen und in Portugal auf. Diese Regionen sind durch große Nadelwälder geprägt, die biogene sekundäre Vorläufersubstanzen emittieren. Allerdings werden hier nur Massenkonzentrationen von maximal $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ erreicht, d.h. die Gesamtverteilung von PM2.5 wird durch diese Aerosolkategorie nur in aus anderen Quellen emissionsarmen und waldreichen Regionen merklich beeinflusst.

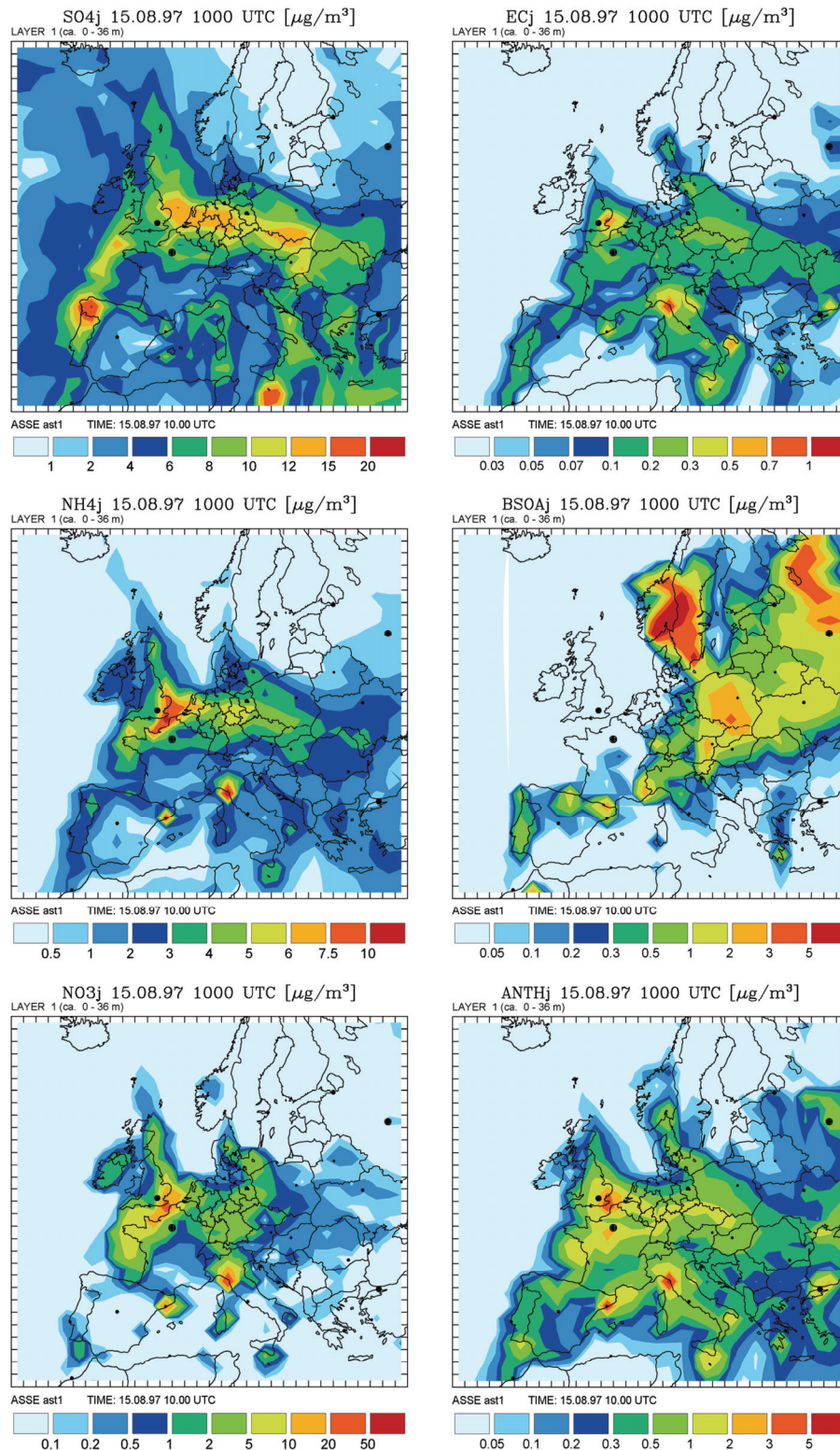


Abb. 40: Massenkonzentration verschiedener EURAD Aerosolklassen (Quelle: EURAD) Sulfat SO_4 , Ammonium NH_4 , Nitrat NO_3 , elementarer Kohlenstoff EC, sekundäre biogene Substanzen BSO und primäres Feinaerosol ANTH) in der untersten Modellschicht für 10 UTC am 15. August 1997.

Abb. 41 zeigt die $\text{AOD}_{\text{SYNAER}}$ des ERS-2-Satelliten am 15. August 1997. Ein Überflug besteht in wolkenfreien Regionen aus jeweils bis zu drei nebeneinander liegenden Messun-

gen. Die Messungen zeigen einen horizontalen Gradienten von $\text{AOD} \leq 0.2$ über Skandinavien zu höheren Werten zwischen 0.5 und 0.8 in Polen und der Tschechischen Republik um anschließend über dem Alpenraum wieder abzufallen auf Werte um 0.2. Nach Werten in Norditalien um 0.4 setzen sich Werte um 0.2 fort bis zum beobachteten Minimum von 0.1 im Bereich des Mittelmeers. Über Tunesien werden wieder hohe Werte um 0.5 erreicht.

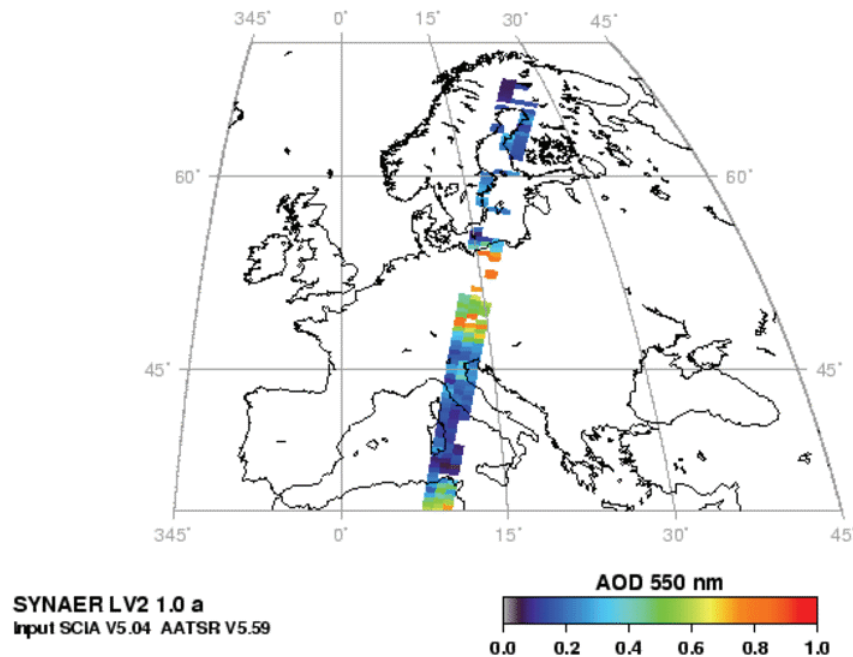


Abb. 41: $\text{AOD}_{\text{SYNAER}}$ bei 550 nm gemessen vom ERS-2 am 15.8.1997
Dargestellt ist die volle Pixelauflösung der Messung.

Abb. 42 – Abb. 44 zeigen jeweils für die Komponenten WASO, SOOT und INSO das mit Hilfe des neuen **H**-Operators bestimmte Feld des Hintergrunds AOD_{x_b} , der OmF und der Analyse AOD_{x_a} .

Die $\text{AOD}_{y,\text{WASO}}$ weist neben niedrigen Werten um 0.1 im südlichen Mittelmeer, die sich mit Werten um 0.2 bis in die Tschechische Republik fortsetzen, ein lokales Maximum von über 0.6 am Nordrand der Wolkenlücke über Polen auf. Über Skandinavien dagegen werden wieder Werte von unter 0.2 gemessen. Im Vergleich zu Abb. 41 zeigt sich der räumliche Auflösungsverlust der Beobachtungen durch die Projektion in das EURAD-Modellgitter bei einer Gitterweite von 125 km, die sich erst ab 2006 auf 56 km verbessert.

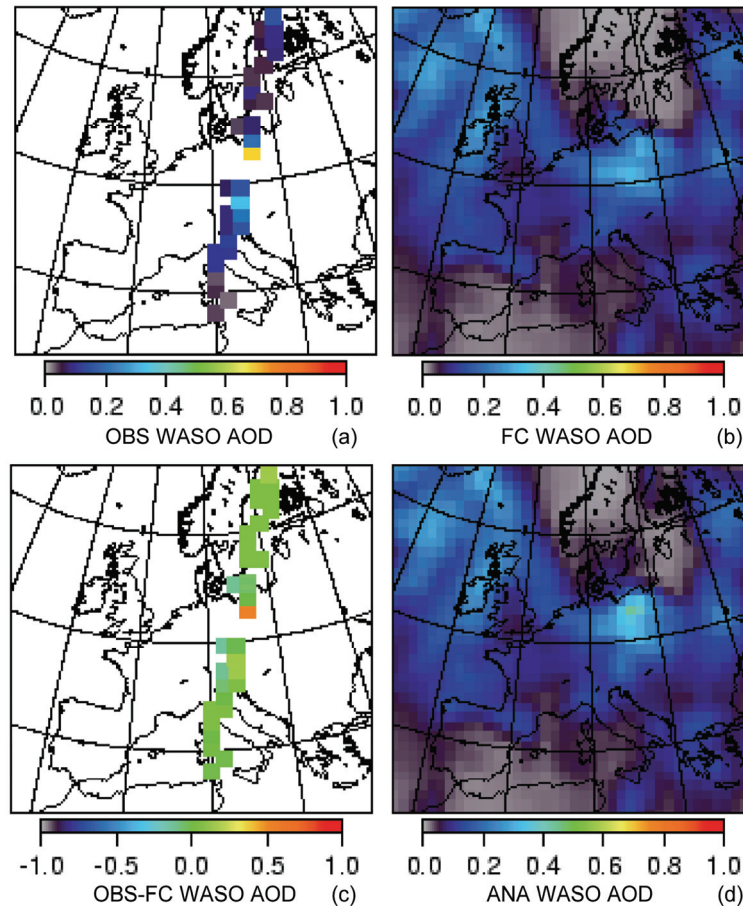


Abb. 42: Assimilationsbeispiel für die Komponente WASO

$AOD_{y,WASO}$ (a) gemessen vom ERS-2-Satelliten am 15. August 1997 zusammen mit $AOD_{x_b,WASO}$ (b) um 10 UTC, der OmF_{WASO} (c) und der $AOD_{x_a,WASO}$ (d).

$AOD_{x_b,WASO}$ erreicht Maxima im nördlichen Atlantik, über Irland und Nordengland und in Polen. Die modellierten Sulfate über dem Nordatlantik sind deutlich zu sehen. Obwohl diese in der Massenkonzentrationsverteilung geringere Werte als z.B. die Maxima von Nitraten und Ammonium annehmen, erreichen sie durch das Zusammenwirken von Brechungsindex und Größenverteilung maximale AOD.

Der Realteil des Brechungsindex bei Ammoniumsulfat ist mit $n = 1.53$ am höchsten. Danach folgt Schwefelsäure mit $n = 1.44$ und Salpetersäure ist die am geringsten beitragende Substanz mit $n = 1.39$. Die Sensitivitätsstudie in Kap. 3.5 zeigt, dass solch eine Variation in n je nach chemischer Zusammensetzung in der Gittersäule Unterschiede bis zu einen Faktor 2 in der AOD verursacht.

Entscheidend für die AOD_{550nm} ist neben n aber auch die Anzahl optisch aktiver Partikel mit einem der Wellenlänge entsprechendem Durchmesser. Am 15. August zieht sich ein Band mit einem $D_m = 0.3 \mu m$ vom Nordatlantik über Großbritannien bis in die Biskaya. Somit gibt es in dieser Region eine größere Anzahl Partikel in der Größenordnung von 550 nm und ein höheres β_{ext} als in der Umgebung mit vergleichbarer Aerosolmassenkonzentration bei gleichzeitig kleineren Partikeln mit einem $D_m = 0.1 \mu m$.

Die lokalen Maxima der PM_{2.5}-Konzentration in der Nähe der Städte Porto, Barcelona, Genua/Florenz und südlich von Sizilien sind auch in der $AOD_{x_b,WASO}$ sichtbar, allerdings sind sie weniger signifikant ausgeprägt. Das entsprechende Maximum der PM_{2.5}-

Konzentration wird von Nitrat mit Werten über $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ gebildet, während Sulfat mit einem geringen Wert von 8 bis $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und Ammonium mit 7.5 und $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ beiträgt. An diesem Tag ist das Verhältnis von Ammonium zu Sulfat in diesen Regionen daher unter dem Schwellwert von zwei. Es werden demzufolge max. $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ Ammoniumsulfat und Schwefelsäure gebildet (s. Kap. 2.4), während über $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ Salpetersäure entstehen. Da diese das kleinste n aufweist, entsteht in der Gesamtheit eine kleine $\text{AOD}_{x,b,\text{WASO}}$ unter 0.1.

In den OmF_{WASO} treten Werte um 0.5 in Polen auf, während alle anderen Beobachtungen positive oder negative OmF_{WASO} bis zu 0.2 zeigen. In $\text{AOD}_{x,a,\text{WASO}}$ ist daher eine deutliche Verstärkung des schon in $\text{AOD}_{x,b,\text{WASO}}$ vorhandenen lokalen Maximums über Polen durch die Assimilation der noch höheren $\text{AOD}_{y,\text{WASO}}$ als Ergebnis der Assimilation sichtbar.

$\text{AOD}_{y,\text{WASO}}$ wird mit einem Farbbalken von 0 – 1.0 dargestellt, während dieser für $\text{AOD}_{y,\text{SOOT}}$ und $\text{AOD}_{y,\text{INSO}}$ auf 0 – 0.15 reduziert wird. $\text{AOD}_{y,\text{INSO}}$ weist ein Maximum der Werte um 0.07 in Polen auf, ansonsten liegen die Werte nahe bei Null und erreichen maximal 0.02. $\text{AOD}_{x,b,\text{INSO}}$ zeigt ebenfalls Werte unter 0.02 und ein lokales Maximum über Polen. Die OmF_{INSO} haben in Polen Werte bis zu 0.1, während die restlichen Messungen mit den modellierten Werten im Bereich von – 0.02 bis 0.02 übereinstimmen. In $\text{AOD}_{x,a,\text{INSO}}$ ist in Polen und in Norditalien die räumliche Ausbreitung der durch $\text{AOD}_{y,\text{INSO}}$ eingebrachten neuen Information durch die gewählte Korrelationslänge von 0.5 Gitterzellen (62.5 km) gut zu erkennen.

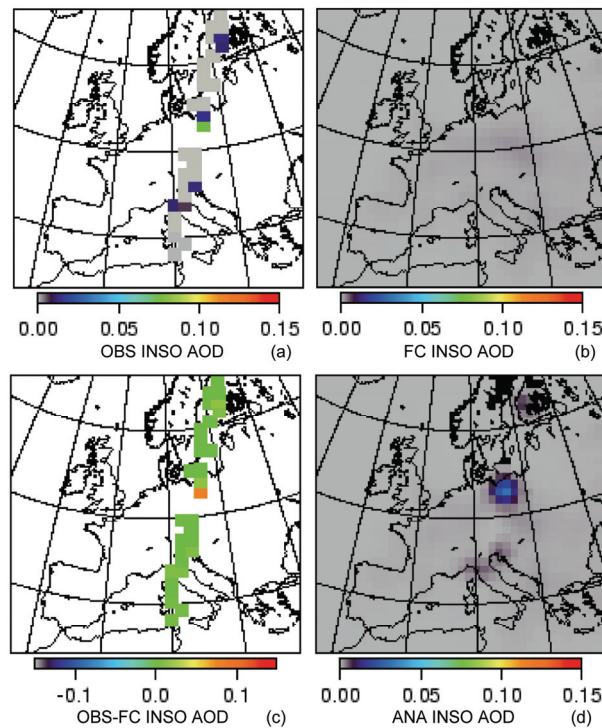


Abb. 43: Assimilationsbeispiel für die Komponente INSO

$\text{AOD}_{y,\text{INSO}}$ (a) gemessen vom ERS-2-Satelliten am 15. August 1997 zusammen mit der $\text{AOD}_{x,b,\text{INSO}}$ (b) um 10 UTC, der OmF_{INSO} (c) und der $\text{AOD}_{x,a,\text{INSO}}$ (d).

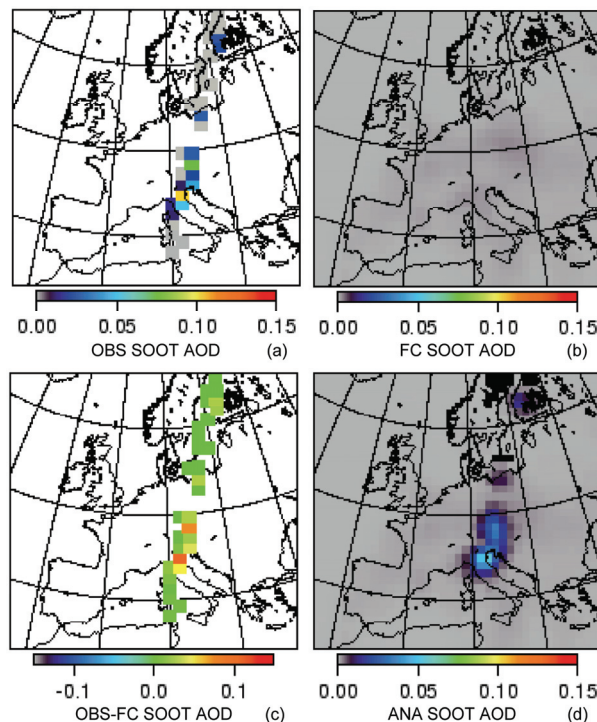


Abb. 44: Assimilationsbeispiel für die Komponente SOOT

$AOD_{y,SOOT}$ (a) gemessen vom ERS-2-Satelliten am 15. August 1997 zusammen mit der $AOD_{x_b,SOOT}$ (b) um 10 UTC, der OmF_{SOOT} (c) und der $AOD_{x_a,SOOT}$ (d).

$AOD_{y,SOOT}$ zeigt lokale Maxima mit 0.1 in Norditalien und 0.07 in der Tschechischen Republik, während die Werte ansonsten unter 0.05 liegen. $AOD_{x_b,SOOT}$ weist flächendeckend sehr kleine AOD-Werte unter 0.02 mit regionalen Maxima über Polen, Norditalien und Frankreich auf. Die größten OmF_{SOOT} mit Werten bis 0.1 bestehen in Norditalien und der Tschechischen Republik. Die restlichen Messungen stimmen mit den modellierten Werten im Bereich von -0.02 bis 0.02 überein. Infolgedessen wird $AOD_{x_a,SOOT}$ insbesondere in Norditalien und der Tschechischen Republik durch die Assimilation intensiviert.

Nachdem die AOD-Analysen der verschiedenen Komponenten bestimmt wurden, wird die Änderung der einzelnen Komponenten linear unter Erhalt der vertikalen Profilstruktur in die einzelnen Modellschichten und Aerosolklassen des Modells übertragen (s. Kap. 3.7). Abb. 45 zeigt exemplarisch die neuen $x_{a,mass}$ der Klassen Sulfate, Ammonium, Nitrat, elementarer Kohlenstoff, Folgeprodukte des α -Pinen und Folgeprodukte des Limonen in der unteren Modellschicht. Im Vergleich mit $x_{b,mass}$ vor der Assimilation (Abb. 40) lässt sich bei den Sulfaten eine Verlagerung des Maximums über Polen nach Norden feststellen, während sich das westlich benachbarte lokale Minimum noch vertieft. Über Skandinavien liegen erhöhte $x_{a,mass}$ entsprechend den Beobachtungen vor. Das in $x_{b,mass}$ vorhandene lokale Maximum nördlich Tunesiens dagegen wird abgeschwächt. Vergleichbare Aussagen gelten auch für die Substanzen Ammonium und Nitrat, da diese in WASO zusammengefasst werden.

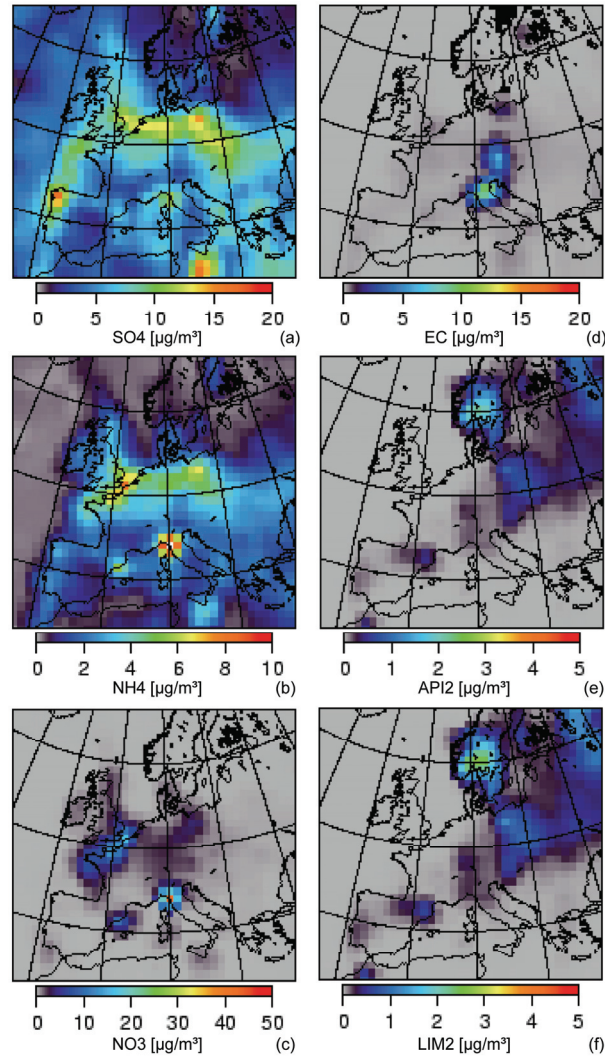


Abb. 45: Räumliche Verteilungen der analysierten Massenkonzentrationen
Dargestellt sind die Aerosolklassen Sulfate (a), Ammonium (b), Nitrate (c), elementarer Kohlenstoff (d), Folgeprodukte des α -Pinen (e) und Folgeprodukte des Limonen (f) nach der Assimilation für 10 UTC am 15. August 1997.

Markant ist die Erhöhung von $x_{a,mass}$ des elementaren Kohlenstoffs infolge der typweisen Assimilation. Während in $x_{b,mass}$ ein lokales Maximum über Genua/Florenz mit Werten bis zu $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ vorliegt, werden nach der Assimilation zusätzliche lokale Maxima mit Werten um $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im östlichen Oberitalien und mit Werten zwischen 5 und $7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in der Tschechischen Republik modelliert.

Beispielhaft sind mit den Folgeprodukten des α -Pinen und des Limonen zwei Bestandteile der biogenen sekundären Aerosolkategorie wiedergegeben. Beide werden als Teil von WASO behandelt (s. Kap. 3.2, Abschnitt EURAD-Aerosolklassen) und weisen eine den anorganischen Substanzen vergleichbare Erhöhung der Werte über Polen auf. Allerdings ist diese Erhöhung betragsmäßig gering entsprechend der geringeren $x_{b,mass}$.

6.2 Fallbeispiel 5. und 25. August 1997

In den betrachteten Fallbeispielen wurde mehrfach eine sehr hohe AOD bis zu 3.5 festgestellt. AOD-Bodenmessungen liegen typischerweise unterhalb von 1.0 und können bei Wüstenstaubausbrüchen Werte bis 2 erreichen. Durch die für den Vergleich mit Satellitenmessungen nötige Betrachtung der gesamten Aerosolsäule des Modells tritt hier ein Effekt auf, der in den bisherigen Modellvalidierungen mit bodennahen Messungen nicht festgestellt werden konnte. Zur Analyse dieses Effekts werden im folgenden Kapitel beispielhaft der 5. und 25. August 1997 näher untersucht.

Meteorologische Situation

Der 5. August 1997 wird von einem Tiefdruckgebiet mit Zentrum westlich des Ärmelkanals geprägt. Dessen Frontensystem zieht sich von Irland über die Bretagne und die Biskaya bis in den Süden Portugals. Weitere lokale Luftdruckminima liegen über dem Nordwesten Frankreichs und Zentralspaniens. Die 00 UTC Bodenwetterkarte des Europäischen Wetterberichts des Deutschen Wetterdienstes analysiert eine Konvergenzlinie, die diese beiden lokalen Minima auf der Vorderseite des Tiefdruckgebiets auf dem Atlantik miteinander verbindet. In Mittel- und Osteuropa dagegen herrscht Hochdruckeinfluss vor, der nur von einer weiteren, allerdings horizontal weniger ausgedehnten Störung verbunden mit einem kleinen Höhentief über Ostdeutschland und Polen unterbrochen wird. Analysen der 500 hPa-Fläche weisen im Bereich dieses Tiefdruckgebiets das Maximum horizontaler Konvergenz in Ostdeutschland zwischen Elbe und Oder auf. Satellitenbilder der NOAA-Wettersatelliten (Abb. 46) zeigen eine Wolkenspirale mit Zentrum westlich der Biskaya; Wolkenfelder liegen ebenfalls über Irland, Westengland, Westfrankreich, dem westlichen Mittelmeer und Polen.

Der 25. August 1997 dagegen wird von einer Gruppe lokaler Druckminima geprägt, die sich auf einer Linie von Finnland über Südschweden und den Ärmelkanal bis an die französische Atlantikküste und Nordspanien aneinanderreihen. Im Laufe des Tages verstärkt sich eines dieser Tiefdruckgebiete mit Zentrum über der Nordsee weiter und bildet aus der bisherigen Tiefdruckrinne ein Frontensystem aus. In der 500 hPa-Analyse um 00 UTC ist eine entsprechende Konvergenzzone vorhanden, deren Maxima über dem südlichen England bzw. dem Ärmelkanal und der nördlichen Ostsee liegt. Mittel- und Osteuropa dagegen liegen unter dem Einfluss eines Hochdruckgebiets mit Zentrum über Westrussland, das nach Süden hin von einem weiteren, insbesondere in der Höhe deutlich ausgeprägten Tiefdruckgebiet über dem Schwarzen Meer begrenzt wird. Diese Druckverteilung spiegelt sich auch in den vorherrschenden Wolkensystemen am 25. August 1997 wieder. Ein markantes Wolkenband zieht sich von Finnland über Schweden auf die Nordsee und läuft nach einem Knick nach Süden über Nordfrankreich und Nordspanien in das westliche Mittelmeer. Das Tiefdrucksystem über dem Schwarzen Meer ist ebenfalls anhand seiner Wolkenstrukturen in den Beobachtungen der NOAA-Satelliten (Abb. 47) sichtbar. Mittel- und Osteuropa und das mittlere und östliche Mittelmeer dagegen sind weitgehend wolkenfrei.

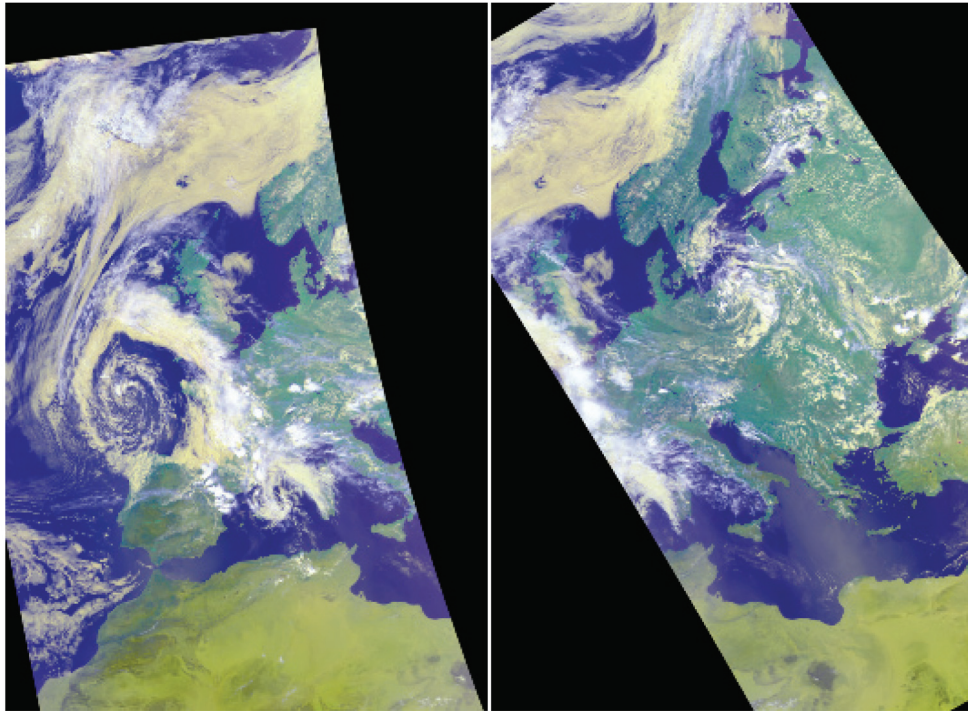


Abb. 46: Farbkomposite des NOAA-14-AVHRR am 5.8.1997 um 12:08 UTC (rechts) und 13:50 UTC (links)

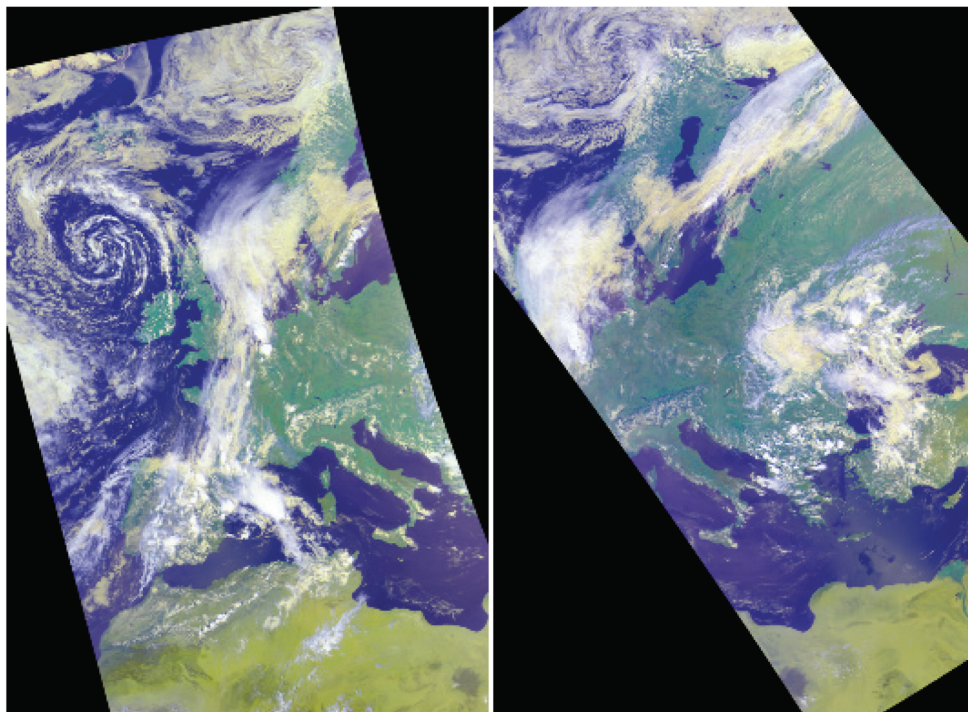


Abb. 47: Farbkomposit des NOAA-14-AVHRR am 25.8.1997 um 11:50 UTC (rechts) und 13:31 UTC (links)

Modellergebnisse und Beobachtungen

Am 5. August 1997 treten bei der AOD_{x_b} Maxima mit Werten bis 1.8 zwischen Großbritannien und Irland und an der deutsch-polnischen Grenze auf (Abb. 48). Insbesondere die hohen Werte über dem Atlantik sind eingebunden in eine auffällige, zyklonale Struktur. Am 25. August 1997 liegen ebenfalls zwei Maxima über Nordfrankreich und in der nördlichen Ostsee mit Werten bis zu 2.3 vor, die durch ein markantes Band höherer Werte verbunden sind, das sich von Portugal über den Ärmelkanal und die südliche Nordsee bis in das Baltikum zieht.

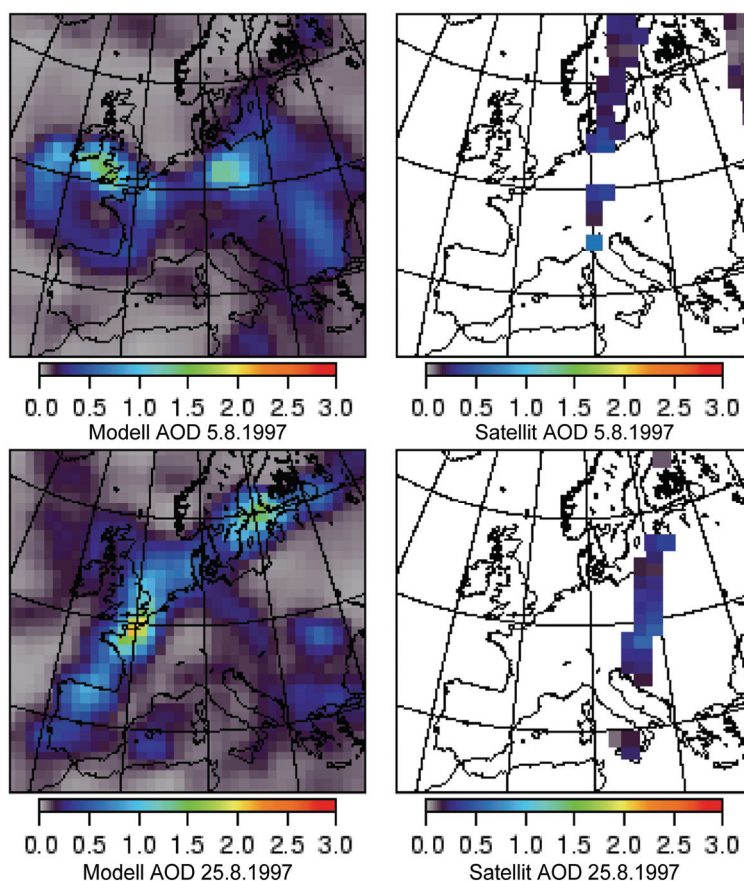


Abb. 48: Vergleich von Modellhintergrund und Beobachtungen

AOD_{x_b} (links) und AOD_y (rechts) am 5. August 1997 (oben) und am 25. August 1997 (unten) mit Werten bis zu 2.3.

Durch den Satelliten dagegen werden in Skandinavien und Russland am 5. August $AOD_y < 0.2$ gemessen, während an der norddeutschen Küste und in Süddeutschland AOD_y bis zu 0.4 auftreten. Zwischen der Ostseeküste und Süddeutschland liegt eine durch Wolken verursachte Messlücke. Weiter südlich werden AOD_y um 0.1 beobachtet, die in Oberitalien nochmals auf Werte um 0.5 ansteigen. Am 25. August liegen AOD_y kleiner als 0.2 im Baltikum, um 0.5 in der Slowakei und Ungarn und unterhalb von 0.2 auf dem Balkan und in der Umgebung Siziliens vor.

Die horizontalen Gradienten der AOD_y stimmen mit denen der AOD_{x_b} generell gut überein, die absoluten Werte weichen allerdings deutlich voneinander ab. So werden an allen Gitterzellen mit vorhandenen Satellitenbeobachtungen höhere AOD gemessen. Umgekehrt erreichen die AOD_{x_b} sehr hohe Werte in einigen Gitterzellen, die entweder aufgrund der

Beobachtungsgeometrie vom Satelliten nicht abgedeckt oder aber infolge vorhandener Wolkenbedeckung nicht gemessen werden können. Betrachtet man alle Fallbeispiele aus 1997, so fällt auf, dass dieses Fehlen von Beobachtungen für alle Regionen hoher AOD_{x_b} über 1.0 gilt.

Dieses motiviert die Hypothese, dass die hohen AOD_{x_b} mit vorhandenen Bewölkungsstrukturen korreliert sind. Der Vergleich der NOAA-Satellitenbilder (Abb. 46 und Abb. 47) mit AOD_{x_b} stützt diese Hypothese. Die markante zyklonale Struktur des AOD_{x_b} - Maximums am 5. August findet sich auch in der vorhandenen Wolkenverteilung. Am 25. August liegt ebenfalls ein ausgeprägtes Wolkenband im Bereich der hohen AOD_{x_b} . Auch die jeweils zweiten AOD_{x_b} -Maxima über Polen am 5. August und über der Ostsee am 25. August korrelieren mit Wolkengebieten im Satellitenbild.

Vertikalprofil einzelner Gitterzellen

Die $x_{b,mass}$ einzelner Vertikalprofile zeigen in Fällen mit sehr hoher AOD_{x_b} ebenfalls sehr hohe Werte der Wasserkonzentration in Aerosolpartikeln höherer Schichten. Als Beispiel wird für den 5. August die Gitterzelle bei 50.79° N und 12.24° E ($x = 19, y = 15$) mit einer $AOD_{x_b} = 1.68$ betrachtet. Das Vertikalprofil zeigt ein stark ausgeprägtes Maximum in den Modellschichten Nr. 10 und 11 (ca. 1200-1600 m), die mit 0.68 und 0.67 zur gesamten AOD_{x_b} beitragen (Abb. 49).

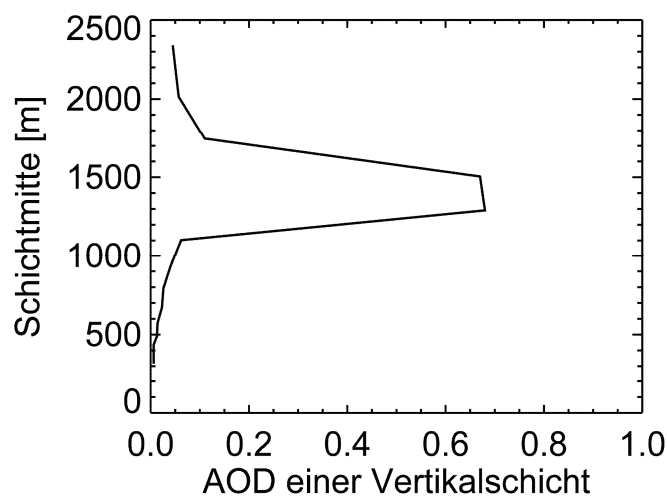


Abb. 49: $AOD_{x_{b,i}}$ in den Vertikalschichten der Zelle (19,15) für den 5.8.1997

Tab. 8 listet für die unteren 15 Modellschichten jeweils die Schichthöhe, β_{ext} , $AOD_{x_{b,i}}$ und die $x_{b,mass}$ des Wassers im Aerosolpartikel in der Akkumulationmode (VH2OAJ) für die i -te Schicht. Es ist auffällig, dass die hohe AOD_{x_b} durch Beiträge höherer Modellschichten mit einer $x_{b,mass}$ des Partikelwassergehalts von 1153 bzw. 1126 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ verursacht wird, während in Bodennähe sehr kleine $AOD_{x_{b,i}}$ auftreten. Das modellierte Partikel ist ein reines Aerosolpartikel in einer als wolkenfrei modellierten Gitterzelle.

Schicht i	Schichthöhe [m]	$\beta_{ext,i}$ [1/km]	$AOD_{x_b,i}$	VH2OAJ _{i} [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]
0	297 – 336	0.16	0.006	20.58
1	336 – 375	0.15	0.006	19.99
2	375 – 414	0.15	0.006	20.95
3	414 – 454	0.16	0.006	22.80
4	454 – 533	0.16	0.013	24.85
5	533 – 612	0.17	0.014	28.22
6	612 – 733	0.19	0.023	32.17
7	733 – 855	0.21	0.026	40.80
8	855 – 1019	0.25	0.041	54.57
9	1019 – 1186	0.37	0.062	100.91
10	1186 – 1397	3.2	0.68	1153.06
11	1397 – 1614	3.1	0.67	1126.06
12	1614 – 1879	0.42	0.11	120.75
13	1879 – 2152	0.21	0.057	41.02
14	2152 – 2529	0.12	0.045	17.59

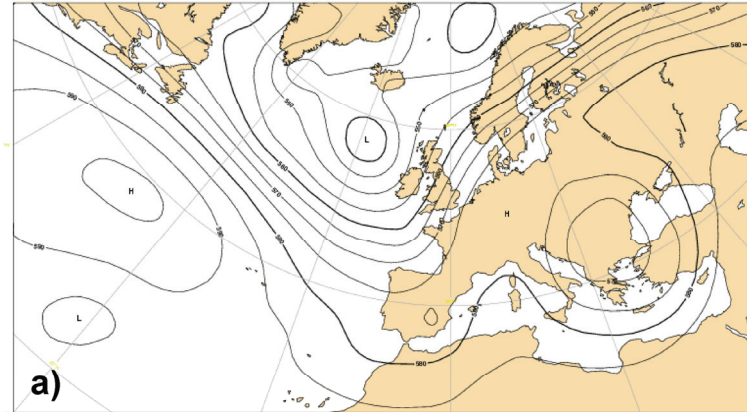
Tab. 8: Beitrag einzelner Modellschichten i zur AOD_{x_b} bei 550 nm
 Die Tabelle gibt für die Gitterzelle (19,15) am 5. August 1997 Schichthöhe, Extinktionskoeffizient und Massenkonzentration des Aerosolpartikelwassergehalts wieder.

Vergleich mit Analysen der horizontalen Divergenz

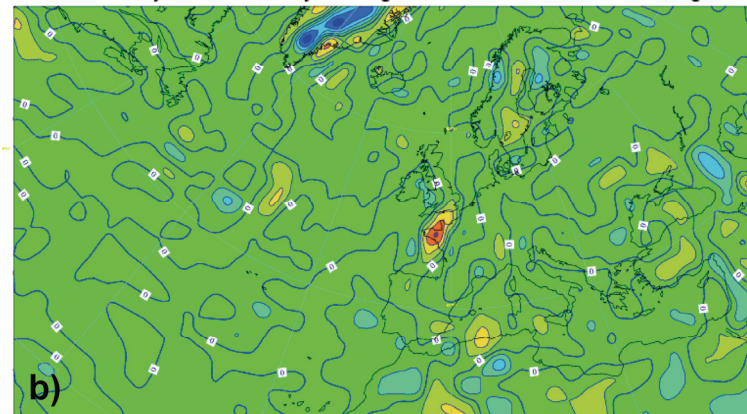
Assimilationsexperimente (Elbern, 2005) zeigen ähnliche Effekte auch für das gasförmige Stickstoffdioxid. Am 5. August 1997 werden hohe Werte bis zu 10^6 Moleküle/cm² in einer vergleichbaren und ebenfalls sehr auffälligen kreisförmigen Struktur beobachtet. Es handelt sich bei dem beobachteten Effekt also nicht nur um eine Eigenschaft der modellierten Aerosolchemie, da das Aerosolmodul nicht in die Gasphase zurückkoppelt. Es liegt daher der Verdacht nahe, dass es sich bei den beobachteten hohen x_{mass} partikel- und gasförmiger Substanzen nicht nur um ein Ergebnis der modellierten Aerosol-Wolken-Wechselwirkung handelt, sondern dass es eine weitere dynamische Komponente geben muss oder es sich um eine Folge der beobachteten hohen Werte von Vorläufersubstanzen in der Gasphase handelt. Allerdings sind die NO₂-Konzentrationen maximal auf das Doppelte der typischen Werte erhöht, während die modellierten AOD um einen Faktor 3-10 zu hoch liegen.

Daher wird ein Vergleich mit den Zonen maximaler Konvergenz in verschiedenen Höhenniveaus der Analyse des Europäischen Zentrums für Mittelfrist-Wettervorhersage durchgeführt (Abb. 50). Am 25. August 1997 stimmen die Zonen maximaler horizontaler Konvergenz mit Werten bis zu -4 s^{-1} auf dem 850 hPa Niveau der 06 UTC-Analyse sehr gut mit dem modellierten AOD_{x_b} -Maximum über dem Ärmelkanal überein.

ECMWF Analysis VT:Monday 25 August 1997 06UTC 500hPa geopotential height



ECMWF Analysis VT:Monday 25 August 1997 06UTC 850hPa divergence



ECMWF Analysis VT:Monday 25 August 1997 06UTC 1000hPa divergence

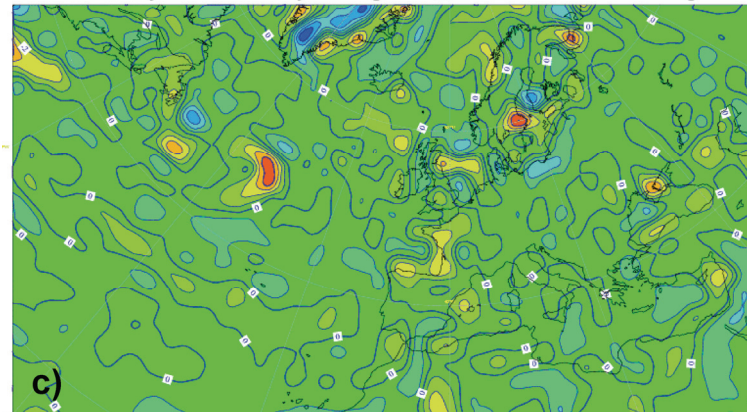


Abb. 50: Analysefelder des ECMWF-Modells am 25.8.1997

Geopotentielle Höhe in 500 hPa (a), horizontale Divergenz in 850 hPa (b) und in 1000 hPa (c) für den 25. August 1997. Positive Divergenzwerte sind in blauen Farbtönen mit einem Isolinienabstand von 1 s^{-1} dargestellt, negative Divergenzwerte dagegen in gelb-roten Farbtönen (Quelle: ECMWF).

Das modellierte AOD_{x_b} -Maximum über der Ostsee liegt ebenfalls bei einem Maximum horizontaler Konvergenz bis zu -4 s^{-1} auf dem 1000 hPa Niveau der 06 UTC-Analyse.

Diese Untersuchung deutet auf einen Transporteffekt, der in Zonen maximaler horizontaler Konvergenz die Aerosolkonzentration in den darüber liegenden Schichten erhöht und in der Umgebung die Aerosolkonzentration durch ein ‚Absaugen‘ erniedrigt. Der Vergleich mit den jeweils höheren Satellitenmessungen in wolkenfreien Regionen stützt diese Theorie einer Verlagerung von Aerosolen aus wolkenfreien Regionen in die Regionen maximaler Konvergenz in Tiefdruckgebieten im EURAD-Modell.

Die beobachtete Aerosolkonzentration in Zonen maximaler Konvergenz kann dagegen nicht mit Beobachtungen verglichen werden. AOD-Bodenmessungen verlangen absolute Wolkenfreiheit und auch die verwendeten Satelliten können in Regionen mit einem Wolkenbedeckungsgrad von über 30% keine Messungen durchführen. In-Situ-Messungen von Flugzeugen können ebenfalls in Wolkengebieten Aerosolpartikel nicht mit ausreichender Genauigkeit von Wolkentröpfchen trennen. Es kann daher keine auf dem Vergleich mit In-Situ-Messungen beruhende Aussage getroffen werden, ob die modellierten hohen AOD-Werte realistisch sind oder nicht. Allerdings lassen die in diesen Fällen im Vergleich zur Satellitenmessung zu kleinen Aerosolwerten außerhalb von Wolkengebieten vermuten, dass dieser dynamische Effekt im Modell überschätzt wird. Zusätzlich könnte auch eine Unterschätzung der Aerosolsenke durch Auswaschen in Tiefdruckgebieten die hohen AOD-Werte mit verursachen.

Auch am 5. August 1997 kann in der 850 hPa-Analyse um 06 UTC eine leicht positive Konvergenz beobachtet werden, die sich verstärkt mit Werten bis zu -4 s^{-1} auch im 1000 hPa-Niveau wieder findet (Abb. 51). Das zweite AOD_{x_b} -Maximum über Ostdeutschland kann dagegen nicht durch eine erhöhte horizontale Konvergenz erklärt werden. Und es erscheint als fragwürdig, dass ein wie in diesem Fall auf nur 4 Modellhöenschichten beschränktes und gleichzeitig sehr ausgeprägtes AOD-Maximum durch einen horizontalen Transporteffekt alleine erklärt werden kann. Eine Untersuchung des modellinternen Verhaltens in diesen Fallbeispielen sollte daher sowohl die Aerosol-Wolken-Wechselwirkung als auch Aerosoltransporte in Konvergenzgebieten betrachten.

Automatische Erkennung

Im Rahmen dieser Arbeit mit dem Schwerpunkt auf dem **H**-Operator wurden keine weiteren Untersuchungen von Aerosol- oder Gasphasenmodellierung oder der Horizontaltransporte in Wolkengebieten vorgenommen. Es wurde dagegen versucht, solche bisher noch ungeklärte Modellsituationen durch eine für den operationellen Einsatz geeignete automatische Post-Prozessierung in allen in dieser Arbeit verwendeten Datensätzen auszuschließen. Ausgeschlossen werden Gitterzellen mit einem zu großen vertikalen Gradient der AOD_{x_b} , d.h. falls

$$AOD_{x_b,i} - AOD_{x_b,j} > 0.1 \quad (35)$$

für zwei beliebige Höenschichten i und j oder falls eine für Europa unrealistisch hohe

$$AOD_{x_b,\text{Gesamt}} > 0.7 \quad (36)$$

vorliegt. Dies ist im Fall eines Wüstenstaubausbruchs nicht gerechtfertigt, kann aber akzeptiert werden, da die verwendete EURAD-Version keine Transportprozesse mineralischer Aerosole beinhaltet.

6.3 Staubausrüche in Europa

Nachdem der Vergleich von Analysefeld und AERONET-Messungen der gesamten ASSET-Periode eine Verbesserung insbesondere an den von Staubausrüchen betroffenen Mittelmeerstationen zeigt, werden nun manuell ausgewählte Staubsturmereignisse getrennt untersucht. Hierfür wurden mit Hilfe von MODIS Farbkompositen (<http://modis-atmos.gsfc.nasa.gov/IMAGES/index.html>) 29 Tage im Zeitraum 6. Juli – 5. Oktober 2003 ausgewählt, an denen sich ein ENVISAT-Satellitenorbit in der räumlichen Nähe eines Staubsturmausbruchs befindet. Insgesamt ergeben sich 44 Koinzidenzen zwischen AERONET-Messungen und dem EURAD-Feld. Dabei wurde die ‚räumliche Nähe‘ visuell und großzügig definiert, um möglichst alle relevanten Fallbeispiele zu untersuchen.

Erst in einem zweiten Schritt werden durch die Kriterien $|\Delta x_{aod}| > 0.05$ und $|\Delta x_{aod}| > 0.1$ die Fallbeispiele extrahiert, bei denen durch die Assimilation eine neue Information in das Modell eingefügt wird (Abb. 52). Für $|\Delta x_{aod}| > 0.05$ verringert sich E_s von -0.26 auf -0.07 und der RMSE von 0.38 auf 0.21 mit $N = 10$ und den Stationen El Arenosillo (3 Messungen), Etna, Kreta, Lampedusa (3 Messungen), Lecce und Oristano. Werden zusätzlich mit $|\Delta x_{aod}| > 0.1$ nur die Fälle mit den größten Analyseinkrementen betrachtet, so verringert sich E_s von -0.31 auf 0.0 und der RMSE von 0.49 auf 0.21 mit $N = 5$ und den Stationen El Arenosillo (2 Messungen), Etna, Lampedusa und Oristano. Somit kann auch für Staubepisoden eine verbesserte Modellierung infolge der Assimilation der Satellitenbeobachtungen festgestellt werden.

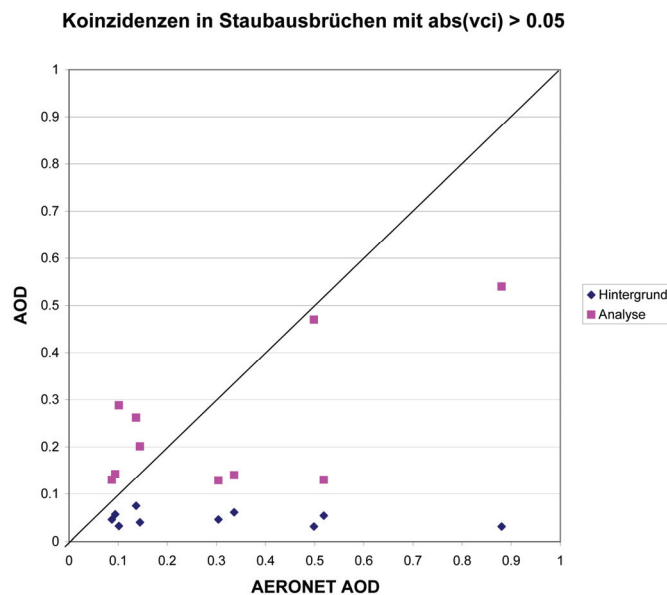


Abb. 52: Hintergrund- bzw. Analysefeld versus AERONET AOD-Messung für Staubbälle für den ASSET-Zeitraum mit einem $|\Delta x_{aod}| > 0.05$ und $N = 10$

7 Zusammenfassung und Diskussion

Die vorliegende Arbeit beschreibt einen neu entwickelten Beobachtungsoperator für die variationelle Assimilation satellitenbasierter Messungen verschiedener Komponenten des Grenzschicht-Aerosols in das EURAD Chemie-Transport-Modell. Damit wurden die Voraussetzungen für einen Einsatz der sequentiellen Assimilation im operationellen Vorhersagebetrieb untersucht und erstellt.

Die variationelle Assimilation erlaubt die Nutzung von Satellitenbeobachtungen und damit die Anpassung der Modellvorhersagen an außergewöhnliche Ereignisse wie z.B. Sandstaubausbrüche aus der Sahara, sommerliche Waldbrände in Südeuropa, Torfbrände in Osteuropa, kurzfristige Emissionsquellen durch Feuer infolge von Unfällen oder dynamische Emissionsquellen erzeugt durch Vegetation, die Wirtschaftstätigkeit und den Verkehr. Sie ermöglicht somit eine räumliche Verfeinerung und Berücksichtigung der bisher nur in statischen Katastern beschriebenen Emissionsquellen.

In bisherigen Arbeiten zur Assimilation von Aerosolbeobachtungen wurde nur die Gesamtkonzentration bzw. die gesamte aerosoloptische Dicke (AOD) unter der Annahme eines festen Aerosoltyps behandelt. Der Schwerpunkt dieser Arbeit wurde dagegen auf die Assimilation von aerosoltyp-auflösenden Messungen des ERS-2 und des ENVISAT-Satelliten gelegt. Durch das SYNAER-Verfahren stehen AOD der wasserlöslichen (WASO), der wasserunlöslichen (INSO) und der russhaltigen (SOOT) Aerosolkomponente zusammen mit aerosoloptischen Dicken von Seesalz und mineralischem Aerosol mit einer Pixelauflösung von $60 \times 30 \text{ km}^2$ zur Verfügung. Diese werden in der Assimilation komponentenweise getrennt behandelt. Somit kann nun zwischen verschiedenen Gruppen von Emissionsquellen unterschieden werden.

In der Methodenentwicklung musste die Kopplung der chemischen Sicht des Modells auf der Basis von Massenkonzentrationen einzelner – teilweise bzgl. der optischen Eigenschaften unbekannter – Aerosolsubstanzen mit der optisch-physikalischen Sicht der Strahlungsfeld-Messung des Satelliten entwickelt werden. Dafür wurde zunächst die Vergleichbarkeit der in Messung und Modell genutzten Aerosolbeschreibung untersucht. Die anorganischen Substanzen werden der WASO-Komponente zugeordnet, während primäres organisches Aerosol, das primäre Feinaerosol und das sonstige anthropogene Aerosol der wasserunlöslichen Komponente zugeordnet werden. Die sekundären organischen Aerosolklassen werden aufgrund von Literaturangaben mehrheitlich als wasserlöslich behandelt. Elementarer Kohlenstoff wird der SOOT-Komponente zugeordnet und die maritimen und mineralischen

Modellklassen den entsprechenden Seesalz- und mineralischen Aerosolkomponenten in SYNAER.

Prinzipiell kann das 3D-Var-Assimilationsverfahren für Massenkonzentrationen oder das in die AOD transformierte Hintergrundfeld angewandt werden. Zur Reduktion des numerischen Aufwands (1 statt 23 Höhenschichten, 5 statt 29 Variablen) und entsprechend des Informationsgehalts der Beobachtungen wird die Assimilation zweidimensional im AOD-Raum der einzelnen Aerosolkomponenten durchgeführt.

Für die AOD-Berechnung ist eine Charakterisierung der EURAD-Aerosolsubstanzen durch komplexen Brechungsindex und Größenverteilung der Aerosolpopulation nötig. Die AOD wird in EURAD durch die anorganischen Substanzen und den Wassergehalt des Partikels dominiert. Die Modellierung von sekundären organischen Substanzen ist rechenzeintensiv. Bei einem Anteil an der AOD von typischerweise 5-10% und in Einzelfällen von bis zu 20% sollte sie jedoch durchgeführt werden.

Sensitivitätsanalysen im Rahmen dieser Arbeit ergeben, dass der Realteil des Brechungsindex mit einer Genauigkeit von 0.1 oder besser und der Imaginärteil mit einer Genauigkeit von 0.03 oder besser bekannt sein sollten, um im Rahmen des RMSE der besten heutigen AOD-Satellitenbeobachtungen zu bleiben.

Für die anorganischen Ionen sind Brechungsindex-Werte bekannt, für die Klassen primär organisch, primäres Feinaerosol und elementarer Kohlenstoff wurden bestehende Datenbanken mit Hilfe einer Literaturrecherche aktualisiert. Die Klasse der sekundären organischen Substanzen wird im Modell allerdings nur als „Reaktionsprodukte einer Gruppe von Vorläufersubstanzen“ ohne weitere chemische Charakterisierung beschrieben. In luftchemischen Messkampagnen wurde eine Vielzahl von sekundären chemischen Substanzen gefunden, allerdings lassen sich typischerweise nur 10-50 % der organischen Masse einer Probe chemisch identifizieren. Für die bekannten Substanzen zeigt sich, dass aromatische Ringstrukturen einen Realteil des Brechungsindex zwischen 1.5 und 1.6 aufweisen, während aus linearen Kohlenstoffketten bestehende organische Substanzen typischerweise einen Realteil des Brechungsindex zwischen 1.38 und 1.48 haben.

Die Beobachtungen weisen eine für die verschiedenen Aerosolkomponenten festgelegte und nur mit der relativen Luftfeuchtigkeit der Umgebungsluft modifizierte Größenverteilung auf. Das Modell dagegen modelliert die Größenverteilung explizit einschließlich des Partikelwachstums durch Alterung oder Deposition. Eine Variation des Modendurchmessers von 0.01 bis 1 μm für eine typische Verteilung wasserunlöslichen Aerosols zeigt eine Variation von 0.1 auf 1.5 km^{-1} des Extinktionskoeffizienten. Für die AOD-Berechnung an der Referenzwellenlänge von 550 nm muss daher die Hintergrund-Größenverteilung jeweils in eine SYNAER-äquivalente Größenverteilung unter Annahme von Massenkonzanz umgerechnet werden. Diese Umrechnung ist eine Fehlerquelle des Beobachtungsoperators. Eine Analyse des ASSET-Zeitraums zeigt jedoch, dass 82% der Differenzen der AOD mit und ohne Umrechnung der Größenverteilung Werte < 0.05 aufweisen und 96% der Fälle eine Differenz < 0.1 aufweisen. Im Vergleich zur Genauigkeit der Beobachtungen kann diese Fehlerquelle daher akzeptiert werden.

Durch den Einsatz einer schnellen Parametrisierung der Mie-Theorie nach Evans und Fournier (1990) können der Extinktionskoeffizient jeder Höhenschicht und daraus die AOD für das Hintergrundfeld in einer für den operationellen Einsatz geeigneten numerischen Effizienz bestimmt werden.

Bei der Berechnung der AOD des Hintergrunds werden Gitterzellen mit einem vertikalen AOD-Gradienten > 0.1 zwischen zwei Modellschichten oder einer gesamten AOD > 0.7

ausgeschlossen. Diese automatische Qualitätskontrolle wird durch Fälle hoher AOD mit Werten deutlich über 1.0 (beobachtet bis 2.3) motiviert. Vergleichbare Effekte wurden ebenfalls von Elbern (2005) in der Assimilation von gasförmigen Spezies beobachtet. Diese hohen Werte treten bevorzugt in bewölkten Regionen mit horizontalen Konvergenzmaxima im oberen Bereich der atmosphärischen Grenzschicht auf. Ihre horizontale Ausdehnung entspricht in NOAA-Satellitenbildern beobachteten Wolkenstrukturen. In Einzelfällen wurden AOD bis 0.7 in einer einzelnen Vertikalschicht oberhalb von 1000m beobachtet. Einzelfälle zeigen ein großes Partikelwachstum durch eine starke Wasseranlagerung im Aerosolpartikel. Dieser Effekt muss in der weiteren Modellentwicklung untersucht werden und wird im Rahmen dieser Arbeit durch dieses Kriterium ausgeschlossen. In der erweiterten neuen EURAD-Modellversion muss die neue mineralische Aerosol-Klasse in dieser automatischen Qualitätskontrolle ausgeschlossen werden, da Staubsturmausbrüche ebenfalls zu vertikal begrenzten Maxima oberhalb der Grenzschicht führen können.

Hintergrund- und Analysefelder und die Satellitenbeobachtungen wurden mit spektralen AOD-Bodenmessungen (AERONET) und Bodenmessungen der Massenkonzentration von typaufgelösten Aerosolkomponenten des EMEP-Netzwerks für die wasserlöslichen Substanzen SO_4 , NH_4 und NO_3 und des UK Smoke and Sulphur Dioxide – Netzwerks für die Rußkomponente verglichen. Des Weiteren standen aus der COST-633-Datenbank Messungen an nahe beieinander liegenden spanischen Stationen aus einer Messkampagne zur Verfügung.

Der Vergleich der auf ENVISAT angepassten SYNAER Version 1.9 ergibt bei 119 europäischen Vergleichspaaren eine leichte Unterschätzung mit $E_s = -0.06$ und einem RMSE von 0.17 in der AOD. Basierend auf der ENVISAT-Validierung wurde eine Qualitätskontrolle für die Beobachtungen entwickelt. Große Sonnenzenitwinkel oberhalb von 75° und Wolkenbedeckungsgrade größer als 50% werden ausgeschlossen. Für einen Mehrdeutigkeitsfehler > 0.1 bei gleichzeitiger hoher Landalbedo von über 15% und bei einem Mehrdeutigkeitsfehler > 0.05 bei gleichzeitig hoher Wasser-albedo von über 5% werden Beobachtungen verworfen. Außerdem wird ein maximaler Fitfehler von 0.025 akzeptiert. Für den gesamten Datensatz in Europa und Afrika verbessern diese Kriterien bei gleichbleibendem systematischem Fehler der AOD von -0.08 den RMSE von 0.27 auf 0.12. Der Korrelationskoeffizient zwischen vom Satellit und am Boden gemessener AOD steigt von 0.3 auf 0.73 an. Die Anzahl der Validierungsfälle sinkt um 24% von 139 auf 105.

Die Validierung der AOD des Hintergrundfelds zeigt eine für CTM-Modelle typische Unterschätzung mit $E_s = -0.15$ mit $\sigma = 0.17$ für 2268 Datenpaare, die allerdings für das Jahr 2003 besonders ausgeprägt ist. Insbesondere $\text{AOD} > 0.1$ werden unterschätzt und $\text{AOD} > 0.25$ werden im Hintergrundfeld nur vereinzelt erreicht, während die AERONET-Bodenmessungen im Vergleichszeitraum Werte bis 1.0 aufweisen. Besonders auffällig ist die mittlere Unterschätzung E_s von -0.17 und -0.21 in den Sommermonaten Juli und August 2003. Dies lässt sich auf im Satellitenbild visuell gut erkennbare, in der verwendeten EURAD-Version jedoch nicht behandelte Staubepisoden zurückführen. Des Weiteren ist eine höhere Aerosolkonzentration infolge der Trockenheit des Sommers 2003 bei vermehrter Erosion anzunehmen, die ebenfalls in den statischen Emissionskatastern nicht erfasst werden kann. In den Herbstmonaten September bis November reduziert sich E_s auf -0.1 bzw. -0.08, eine Unterschätzung bleibt jedoch auch in diesen Monaten erhalten.

Basierend auf diesen Ergebnissen wird im 2D-Var-Verfahren ein konstantes Diagonalelement der Fehlerkovarianz der Beobachtungen von 0.12 und des Hintergrunds von 0.3 angenommen.

Der Vergleich von Satellitenbeobachtung und Hintergrundfeld zeigt eine im Modell deutlich kleinere AOD der INSO- und SOOT-Komponenten – oftmals werden nur bis zu 15% der beobachteten AOD erreicht. Ein Vergleich mit typischen Ruß-Massenkonzentrationen in der Literatur zeigt, dass diese im Hintergrundfeld durchaus in einzelnen Fällen erreicht werden. Zu diesen Zeitpunkten lagen jedoch keine Satellitenbeobachtungen vor.

In der untersuchten Modellversion werden maritime und mineralische Aerosole noch nicht explizit modelliert. Ein Vergleich mit den komponentenweisen Beobachtungen zeigt, dass in 25% der Fälle die AOD hierdurch um 0.01 bis 0.1, in 7% der Fälle um 0.1 bis 0.2 und in 3% der Fälle um mehr als 0.2 unterschätzt werden.

Der Vergleich mit AERONET-AOD-Messungen zeigt eine Reduktion des systematischen Fehlers E_s von -0.14 im Hintergrundfeld auf -0.12 im Analysefeld bei gleichbleibendem $\sigma = 0.16$ für insgesamt 189 Koinzidenzen. Werden nur Fälle mit einem Mindestmaß an Einfluss durch die Assimilation betrachtet und ein $|\Delta \mathbf{x}_a| > 0.05$ verlangt, so reduziert sich E_s von -0.15 auf -0.07 und der RMSE von 0.25 auf 0.2 bei gleichzeitig fast konstant bleibendem σ . Die Validierung der AOD zeigt einen positiven Einfluss der Assimilation insbesondere an einzelnen Stationen im Mittelmeerraum und an den Stationen Oostende, Dunkerque und Venise und motiviert so die spätere Einzelfallanalyse z.B. von Staubsturmsausbrüchen.

Bei allen Vergleichen zwischen Boden- und Satellitenmessungen muss der Repräsentativitätsfehler zwischen der Punktmessung und dem Flächenintegral des $60 \times 30 \text{ km}^2$ großen Satellitenpixels berücksichtigt werden. Dies gilt ebenfalls für den Vergleich von Hintergrund und Bodenmessung, da das Modell mit einer horizontalen Auflösung von 56 km betrieben wird. Es ist zu erwarten, dass die Skaleneffekte von Modell und Satellit im Vergleich zur Bodenmessung gleich groß sind.

Die durch diesen Skaleneffekt verursachte Streuung in einer Validierung kann am Beispiel von drei in einer Messkampagne vermessenen Stationen in der Bucht von Gibraltar demonstriert werden. Während der Einzelvergleich an den Stationen Algeciras, La Linea und Los Barrios für den 15. September 2003 eine Unter- bzw. Überschätzung der EC/OC-Massenkonzentration im Analysefeld von -20% bis 120% aufweist, wird der Mittelwert dieser drei Stationen im Analysefeld nur um 33% überschätzt. Dieses Beispiel illustriert, dass eine Verbesserung durch die Assimilation v.a. in einer Verkleinerung des systematischen Fehlers, nicht aber in einer Reduktion der Streuung erwartet werden kann.

In der 2D-Assimilation werden vertikal integrierte Satellitenbeobachtungen verwendet – das Analyseinkrement wird anschließend mit einem in allen vertikalen Schichten konstanten Faktor auf die Massenkonzentrationen der einzelnen Schichten umgerechnet. Im Vergleich mit Bodenmessungen wird allerdings nur die Messhöhe von typischerweise 2 m berücksichtigt. Diese fehlende Information über die vertikale Aerosolverteilung in den Beobachtungen trägt ebenfalls zu einer Streuung in Vergleichen mit Bodenmessungen bei.

Werden Messungen der ‚Black Smoke‘ Massenkonzentrationen des ‚UK Smoke and Sulphur Dioxide Networks‘ als Referenz verwendet, so reduziert sich für 209 Fälle mit $|\Delta \mathbf{x}_{a,\text{soot}}| > 0.001$ der systematische Fehler des Hintergrundfelds von $-3.63 \mu\text{g}/\text{m}^3$ auf $-2.73 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Analysefeld, σ nimmt von 3.24 auf $3.08 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und der RMSE von 4.87 auf $4.12 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ab.

In diesem Vergleich wurden 22 im Analysefeld mit mehr als $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ überschätzende Ausreißer aufgrund von 300m aufgelösten MODIS-Farbkompositen als vermutlich nicht (ausreichend) erkannte Wolken in der Beobachtung interpretiert und manuell entfernt. Eine individuelle Untersuchung dieser Fälle erlaubt jedoch keine systematische Veränderung der Qualitätskontrollkriterien für die Beobachtungen.

Beim Vergleich mit Messungen des UK Smoke and Sulphur Dioxide Network muss dessen im Gegensatz zu den optischen AERONET-Messungen hohe Messunsicherheit von 30% berücksichtigt werden. Die beobachtete Verbesserung in mittlerer Abweichung und RMSE vor und nach der Assimilation liegt im Rahmen dieser Messunsicherheit.

Ein Vergleich mit der aufgrund ihrer Instrumentierung besonders geeigneten deutschen Referenzstation Melpitz war aufgrund fehlender Koinzidenzen zwischen Satellit- und Bodenmessung nicht möglich.

In einem weiteren Vergleich der Stickstoff- und Schwefelkonzentration in der wasserlöslichen Komponente basierend auf 81 EMEP-Stationsmessungen mit $|\Delta \mathbf{x}_{a, \text{waso}}| > 0.01$ wurde eine Reduktion des systematischen Fehlers von 2.11 im Hintergrund auf 1.38 $\mu\text{g (S+N)}/\text{m}^3$ im Analysefeld, der Standardabweichung von 3.7 auf 3.43 $\mu\text{g (S+N)}/\text{m}^3$ und des RMSE von 4.27 auf 3.7 $\mu\text{g (S+N)}/\text{m}^3$ festgestellt.

Insgesamt konnte gezeigt werden, dass die separate Assimilation der wasserlöslichen und der rußhaltigen SYNAER-Komponenten einen positiven Einfluß auf das EURAD-Analysefeld hat und insbesondere den systematischen Fehler in der aerosoltypweisen Modellierung verbessert.

Bei der Validierung der WASO-Komponente muss berücksichtigt werden, dass die Beobachtung immer einen WASO-Anteil zur Repräsentanz des atmosphärischen Hintergrunds enthält. Wird also z.B. ein Staubsturm in der Beobachtung vermessen, erhöht sich automatisch die WASO-Konzentration entsprechend des fixen WASO-Anteils an der beobachteten Aerosolmischung. Es kann daher in solchen Fällen zu einer Überschätzung der WASO-Quellen kommen.

Die Genauigkeit der AERONET-Bodenmessungen erlaubt eine zuverlässigere Aussage über die durch die Assimilation erzielte Verbesserung im Analysefeld als die wesentlich ungenaueren Bodenmessungen der typaufgelösten Massenkonzentrationen. Andererseits bietet AERONET aber nur eine Aussage für die gesamte aerosoloptische Dicke. Nur die manuelle Auswahl von Situationen, die durch einzelne Aerosolkomponenten dominiert werden (z.B. Staubaussbrüche), ermöglicht eine aerosoltyp-spezifische Aussage basierend auf AOD-Messungen mit ihrer höheren Genauigkeit.

Der August 2003 war durch andauernde Waldbrände in Portugal gekennzeichnet. Im Vergleich zu der durch das statische Emissionskataster geprägten OmF-Karte dieses Monats ist eine Erhöhung der SOOT-AOD um 0.2 im Analysefeld durch die typweise Assimilation sichtbar. Allerdings lässt sich eine Verbesserung in diesem Fall mangels Koinzidenzen von ENVISAT-Überflügen und AERONET-Validierungsstationen nicht quantitativ nachweisen.

Für Sandsturmausbrüche jedoch lässt sich anhand von manuell mit MODIS-Farbkompositen ausgewählten AERONET-Messungen in der räumlichen Nähe von ENVISAT-Überflügen eine Verbesserung der AOD quantifizieren. Für Fälle mit $|\Delta \mathbf{x}_{aod}| > 0.05$ verringert sich der systematische Fehler E_s von -0.26 auf -0.07 und der RMSE von 0.38 auf 0.21 bei insgesamt 10 Koinzidenzen an den Stationen El Arenosillo (3 Messungen), Etna, Kreta, Lampedusa (3 Messungen), Lecce und Oristano. Werden mit $|\Delta \mathbf{x}_{aod}| > 0.1$ nur die Fälle mit den größten – im Falle von Staubstürmen typischen – Analyseinkrementen betrachtet, so verringert sich E_s von -0.31 auf 0.0 und der RMSE von 0.49 auf 0.21 mit $N = 5$ und den Stationen El Arenosillo (2 Messungen), Etna, Lampedusa und Oristano.

Damit konnte die Verbesserung des Analysefelds durch die aerosoltypweise Assimilation von Satellitenbeobachtungen exemplarisch für eine Waldbrandepisode und mehrere Sandsturmausbruch-Situationen demonstriert werden.

Als nächster Schritt ist zur Elimination von Ausreißern eine detailreichere Beschreibung der Fehlerkovarianzmatrix der Beobachtungen im Hinblick auf die Rahmenbedingungen (z.B. Bodenalbedo, Wolkenbedeckungsgrad, Vegetationstyp) jeder einzelnen Satellitenmessung nötig. Dies wurde im Rahmen eines weiteren Projekts AERO-SAM (Characterization of the spatio-temporal distributions, emission rates and deposition velocities of different aerosol components through assimilating satellite aerosol component observations into a tropospheric chemistry transport model for air quality forecasting) der Deutschen Forschungsgemeinschaft bereits parallel zu dieser Arbeit begonnen. Nach Abschluss dieser Arbeiten stehen damit die einzelnen Elemente für die sequentielle Assimilation der künftigen METOP-Satellitenbeobachtungen zur Verfügung.

Die im Vergleich zu ENVISAT in Raum und Zeit wesentlich besser auflösenden METOP-Satelliten ermöglichen somit ab 2009 eine flächendeckende Assimilation von Aerosoltyp-Beobachtungen insbesondere im wolkenärmeren Sommerhalbjahr und in Regionen mit hochstehender Sonne z.B. Süd- und Mitteleuropas. Einschränkungen in der Datenverfügbarkeit und bei der Aerosoltyp-Unterscheidung in der Beobachtung sind weiterhin in Nordeuropa und in den Wintermonaten bei tief stehender Sonne zu erwarten.

In einem nächsten Schritt könnte ein sequentieller Assimilationslauf den Beobachtungsoperator dieser Arbeit mit dieser Entwicklung kombinieren. Damit könnten Fragen nach der Lebensdauer der assimilierten Information im Modelllauf beantwortet werden und nicht nur die Analysefelder zum Assimilationszeitpunkt sondern auch deren zeitlicher Verlauf validiert werden. Durch die bzgl. Aerosoltypen erweiterten EMEP-Messungen seit 2004 kann für die Assimilation von METOP eine weiter vertiefte Validierung erwartet werden.

Des Weiteren bietet METOP mit seiner höheren raum-zeitlichen Auflösung die Gelegenheit z.B. die Waldbrände in Griechenland 2007 in einem sequentiellen Lauf zu untersuchen und den Einfluss der Assimilation ohne die hier gemachte Einschränkung auf Gitterzellen in der räumlichen Nähe von ENVISAT-Überflügen zu betrachten.

Die verwendete Datenassimilationsmethode mit ihrer Eigenschaft der Best Linear Unbiased Estimation (BLUE) setzt voraus, dass sowohl Modell als auch Beobachtungen frei von systematischen Fehlern sind und nur zufällige Abweichungen assimiliert werden. Die Vergleiche von Modell und Beobachtungen gegenüber den AERONET-Bodenmessungen haben jedoch jeweils einen signifikanten systematischen Fehler gezeigt – sowohl Modell als auch Beobachtungen unterschätzen die aerosoloptische Dicke. Die Analyse der OmF weist ebenfalls systematische Abweichungen zwischen Modell und Beobachtungen an einzelnen Stationen (Südeuropa, Ballungsräume, Po-Ebene) und in einzelnen Episoden auf. Daher wäre eine weitergehende Analyse von systematischen Modell- und Beobachtungsfehlern auf der Basis eines mehrjährigen Datensatzes sinnvoll. Daraus könnten eine systematische Bias-Korrektur der Beobachtungen als Schritt vor der Assimilation und weitere Hinweise auf nötige Modellverbesserungen abgeleitet werden.

Falls die Satellitenmessungen eine signifikant höhere Genauigkeit mit einem $RMSE \leq 0.05$ erreichen, so sollte die Fehlerquelle der Umrechnung in eine SYNAER-äquivalente Größenverteilung wieder berücksichtigt werden. Bei jeder Gitterzelle könnte zuerst ein Vergleich der D_m von Satellitenmessung und Modell gemacht werden, um Beobachtungen auszuschließen, bei denen diese Differenz einen Grenzwert überschreitet.

Alternativ könnte auch das Satellitenmessverfahren auf die Bestimmung einer dynamischen Größenverteilung erweitert werden. Somit würde die Messung einen zusätzlichen Informationsgehalt aufweisen und die Größenverteilung könnte neben der aerosoloptischen Dicke ein Optimierungsparameter der Assimilation werden.

A Detailergebnisse

Breite [°]	Länge [°]	Anzahl L	E_s AOD550	Stdv.	Station	Land
-7,98	-14,42	3	-0.06	0.02	Ascension_Island	Atlantik (UK)
15,34	-1.48	2	-0.02	0.03	Agoufou	Mali
43,94	4,88	6	-0.11	0.06	Avignon	Frankreich
-2.65	-54.95	2	-0.31	0.28	Belterra	Brasilien
16,73	-22.94	3	0.19	0.57	Capo_Verde	Kapverden
44,08	5,06	4	-0.16	0.12	Carpentras	Frankreich
-31.52	-64.46	1	0.18	-	Cordoba-CETT	Argentinien
14.39	-16.96	2	-0.12	0.09	Dakar	Senegal
23,72	-15.95	1	0.06	-	Dahkla	Marokko
51,04	2,37	3	-0.01	0.04	Dunkerque	Frankreich
37,11	-6,74	5	0.14	0.18	El_Arenosillo	Spanien
38,57	-7,91	6	0.13	0.15	Evora	Portugal
48,41	2,68	3	-0.30	0.16	Fontainebleau	Frankreich
35,33	25,28	5	-0.10	0.02	Forth_Crete	Griechenland
57,92	18,95	1	-0.08	-	Gotland	Schweden
53,57	9,973	4	-0.11	0.16	Hamburg	Deutschland
54,18	7,89	2	-0.22	0.27	Helgoland	Deutschland
51,35	12,44	3	-0.14	0.11	IFT-Leipzig	Deutschland
39,91	8.50	5	0.11	0.51	IMC_Oristano	Italien
45,44	12,33	7	-0.07	0.10	ISDGM_CNR	Italien
8.32	4.34	2	-1.24	1.46	Ilorin	Nigeria
45,80	8,63	5	-0.05	0.12	Ispra	Italien
35,52	12,63	2	-0.04	0.08	Lampedusa	Italien
40,33	18,10	3	-0.04	0.02	Lecce_University	Italien
50,61	3,14	2	-0.04	0.02	Lille	Frankreich
53,00	27,50	4	-0.07	0.11	Minsk	Weißrussland
-15.25	23.15	1	-0.15	-	Mongu	Sambia
31,92	34,79	6	-0.04	0.12	Nes_Ziona	Israel
51,23	2,93	4	-0.09	0.04	Oostende	Niederlande
48,70	2,21	3	-0.19	0.12	Palaiseau	Frankreich
41,99	-4,52	3	-0.02	0.04	Palencia	Spanien
41,84	12,65	6	-0.09	0.09	Rome_Tor_Vergata	Italien
-23.56	-46.74	4	-0.25	0.13	Sao_Paulo	Brasilien
30.86	34.78	6	-0.02	0.09	Sede_Boker	Israel
40,63	22,96	1	0.01	-	Thessaloniki	Griechenland
58,26	26,46	2	-0.11	0.09	Toravere	Estland
43,14	6,01	5	-0.09	0.10	Toulon	Frankreich
43,58	1,37	6	0.15	0.11	Toulouse	Frankreich
45,31	12,51	7	-0.06	0.06	Venedig	Italien

Tab. 9: Im Vergleich mit ENVISAT-SYNAER V1.9 genutzte AERONET-Bodenstationen

Breite [°]	Länge [°]	N	E_s AOD _{EURAD-AERONET}	$\sigma_{\text{EURAD-AERONET}}$	Station	Land
43.93	4.88	102	-0.15	0.13	Avignon	Frankreich
36.51	2.88	8	0.03	0.09	Blida	Algerien
51.04	2.37	63	-0.09	0.13	Dunkerque	Niederlande
37.11	-6.73	99	-0.09	0.12	El_Arenosillo	Spanien
37.61	15.02	73	-0.25	0.18	ETNA	Italien
38.57	-7.91	97	-0.08	0.13	Evora	Portugal
48.41	2.68	50	-0.14	0.14	Fontainebleau	Frankreich
35.33	25.28	116	-0.15	0.09	Forth_Crete	Griechenland
57.92	18.95	56	-0.09	0.11	Gotland	Schweden
53.57	9.97	59	-0.07	0.14	Hamburg	Deutschland
54.18	7.89	26	-0.09	0.12	Helgoland	Deutschland
51.35	12.44	47	-0.10	0.17	IFT-Leipzig	Deutschland
39.91	8.50	87	-0.22	0.32	IMC_Oristano	Italien
36.57	34.26	98	-0.21	0.14	IMS-METU-ERDEM.	Türkei
45.44	12.33	95	-0.20	0.19	ISDGM_CNR	Italien
45.80	8.63	87	-0.23	0.28	Ispra	Italien
35.52	12.63	111	-0.17	0.18	Lampedusa	Italien
47.48	8.35	25	-0.12	0.08	Laegeren	Schweiz
40.33	18.10	102	-0.16	0.17	Lecce_University	Italien
50.61	3.14	53	-0.10	0.15	Lille	Frankreich
53.33	-9.90	2	-0.06	0.08	Mace_Head	Irland
53.00	27.50	26	-0.02	0.13	Minsk	Weißrussland
47.00	28.82	5	0.01	0.15	Moldova	Moldavien
55.70	37.51	36	-0.14	0.11	Moscow_MSU_MO	Russland
48.21	11.26	31	-0.14	0.14	Munich_Maisach	Deutschland
51.23	2.93	46	-0.13	0.18	Oostende	Niederlande
48.70	2.21	53	-0.16	0.14	Palaiseau	Frankreich
41.99	-4.52	62	-0.07	0.14	Palencia	Spanien
41.84	12.65	93	-0.12	0.23	Rome_Tor_Vergata	Italien
30.86	34.78	133	-0.12	0.06	Sede_Boker	Israel
58.26	26.46	34	-0.10	0.10	Toravere	Estland
43.58	1.37	79	-0.12	0.15	Toulouse	Frankreich
45.31	12.51	95	-0.21	0.19	Venise	Italien

Tab. 10: Übersicht über die im Vergleich mit EURAD genutzten AERONET-Bodenstationen

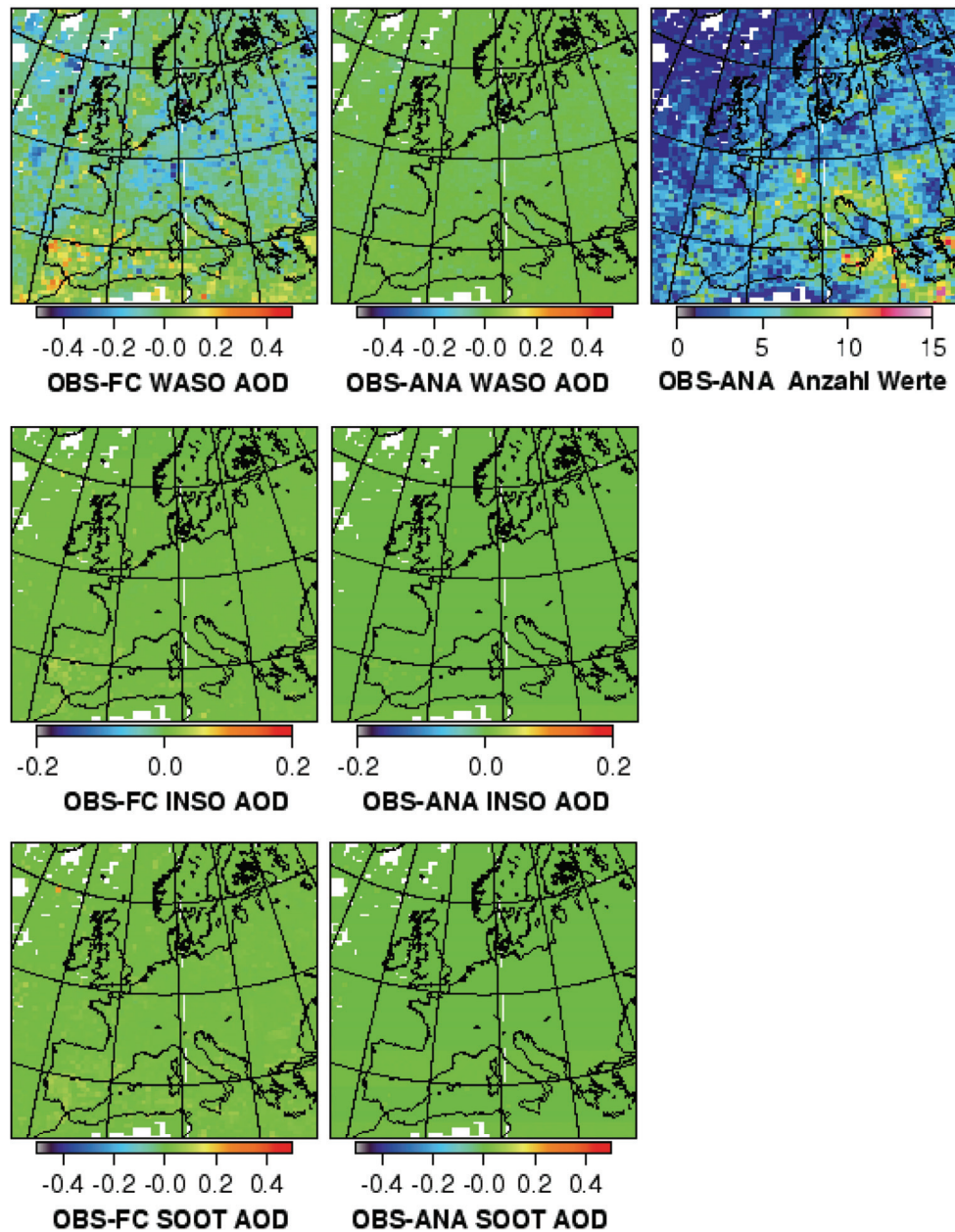


Abb. 53: Europakarte der für jede EURAD-Gitterzelle und für den ASSET-Zeitraum gemittelten OmF (links), der gemittelten OmA (Mitte) und der Anzahl der genutzten Werte pro Gitterzelle (rechts) für die Aerosolkomponenten WASO (oben), INSO (Mitte) und SOOT (unten).

B Satelliten-basierte Retrievalmethoden

Im Folgenden werden die satellitenbasierten Möglichkeiten der Aerosolfernerkundung in tabellarischer Form miteinander verglichen.

Instrument	Satellit	Verfahren	Referenzen
Monospektral, Nadir-Blickrichtung			
AVHRR	NOAA Serie	Dunkelfeldmethode, sichtbarer Spektralbereich, nur über Ozean	Husar et al. und Stowe et al., 1997, Higurashi et al., 2000
Multispektral, Nadir-Blickrichtung			
MODIS	EOS-TERRA, EOS-AQUA	Dunkelfeldmethode, sichtbarer und infraroter Spektralbereich	Kaufman et al., 1997, Tanre et al., 1997
GOME	ERS-2	Dunkelfeldmethode, sichtbarer Spektralbereich, nur über Ozean	Guzzi et al., 1998 und 2001 Toricella et al., 1999
SCIAMACHY	ENVISAT	Dunkelfeldmethode, sichtbarer Spektralbereich, nur über Ozean	Guzzi et al., 1998 und 2001 Toricella et al., 1999
GOME/ATSR-2	ERS-2	Dunkelfeldmethode, breitbandige Messung im VIS und NIR kombiniert mit Spektrometermessung im VIS	Holzer-Popp et al., 2002a und 2002b
SCIAMACHY / AATSR	ENVISAT	Dunkelfeldmethode, breitbandige Messung im VIS und NIR kombiniert mit Spektrometermessung im VIS	Holzer-Popp et al., 2002a und 2002b
TOMS	Nimbus 7, ADEOS, Meteor-3, EarthProbe	UV Aerosolindex	Herman et al., 1997 Torres et al., 1998, 2002
MERIS	ENVISAT	Neuronales Netzwerk, 11 Spektralkanäle (400-900 nm) und Beobachtungsgeometrie als Input	Béal et al., 2005
Multispektral, verschiedene Blickwinkel			
ATSR-2	ERS-2	2 Blickrichtungen	Veefkind et al., 1998, Gonzales et al., 2000
AATSR	ENVISAT	2 Blickrichtungen	Veefkind et al., 1998, Gonzales et al., 2000
MISR	EOS-TERRA, EOS-AQUA	8 Blickrichtungen	Kahn et al., 1997
Multispektral, Nutzung der Polarisisation, verschiedene Blickwinkel			
POLDER	ADEOS-1 ADEOS-2	Polarisationsmessung	Leroy et al., 1997, Deuze et al., 2001

Tab. 11: Übersicht Satellitenplattformen und Retrievalmethoden

Instrument	Zeitliche Auflösung	Räumliche Auflösung	Zeitliche Verfügbarkeit von Level 1 Messungen
Monospektral, Nadir-Blickrichtung			
AVHRR	2 x täglich	1 km	seit 08/1988
Multispektral, Nadir-Blickrichtung			
MODIS	2 x täglich	1km, Level 2 Produkt: 10x10 km ²	seit 02/2000
GOME	alle 3 Tage	80 x 40 km ² (nur 3 Tage pro Monat) oder 320 x 40 km ²	07/1995 – 06/2003
SCIAMACHY	alle 6 Tage	60 x 30 km ²	seit 03/2002
GOME/ATSR-2	alle 6-12 Tage	80 x 40 km ² (nur 3 Tage pro Monat) oder 320 x 40 km ²	07/1995 – 06/2003
SCIAMACHY / AATSR	alle 12 Tage	60 x 30 km ²	seit 03/2002
TOMS	alle 2 Tage	40 x 40 km ²	seit 01/1978
MERIS	alle 3 Tage	300 m oder 1.2 km	seit 2002
Multispektral, verschiedene Blickwinkel			
ATSR-2	alle 6 Tage	1,1 km	seit 07/1995
AATSR	alle 6 Tage	1,1 km	seit 01/2003
MISR	alle 9 Tage	17,6 km (NASA LV2 Produkt)	seit 03/2000
Multispektral, Nutzung der Polarisisation, verschiedene Blickwinkel			
POLDER	alle 4 Tage	6 x 7 km ²	08/1996–06/1997, 04/2003 – 10/2003

Tab. 12: Übersicht verschiedener Sensoren und ihrer raum-zeitlichen Auflösung

Instrument	Parameter	Stärken	Schwächen
Monospektral, Nadir-Blickrichtung			
AVHRR	AOD	operationell, lange Zeitreihe vorhanden	nur über Ozean, Annahme maritimer Aerosoltyp
Multispektral, Nadir-Blickrichtung			
MODIS	AOD, Unterteilung in große und kleine Partikel	operationell, Land und Ozean, hohe räumliche Auflösung	über hellen Wüstengebieten
GOME	AOD	gute spektrale Auflösung	nur über Ozean, Fehler durch nicht erkannte Wolken, große Pixel
SCIAMACHY	AOD	gute spektrale Auflösung	nur über Ozean, Fehler durch nicht erkannte Wolken
GOME/ATSR-2	AOD und Aerosolkomponenten (Sulfat/Nitrat, wasserunlöslich, Seesalz, industrieller und Biomasse-Ruß, mineralischer Staub)	Land und Ozean, Aerosoltyp ableitbar	über hellen Wüstengebieten, Typinformation bei opt. Dicken < 0.1 , große Pixel bei der Aerosoltypinformation
SCIAMACHY / AATSR	wie GOME/ATSR-2	Land und Ozean, operationell, Aerosoltyp ableitbar	über hellen Wüstengebieten, Typinformation bei opt. Dicken < 0.1
TOMS	Aerosolindex, Erkennung von Staub- und Rußaerosolen,	operationell, lange Zeitreihe vorhanden	räumliche Auflösung, Wolkenfehler, sensitiv nur auf UV-absorbierende Aerosole
MERIS	AOD bei 550 nm	Land und Ozean, gute spektrale Auflösung	fester Aerosoltyp und Schicht in 12 km Höhe angenommen
Multispektral, verschiedene Blickwinkel			
ATSR-2	AOD und Ang.-Koeff. über Wasser	räumliche Auflösung	bei ausgeprägter Orographie
AATSR	AOD und Ang.-Koeff. über Wasser	räumliche Auflösung	bei ausgeprägter Orographie
MISR	AOD, 5 Aerosolklassen (Sulfate, Seesalz, Industrie- und Biomasse-Ruß, Staub)	operationell, Aerosoltyp auflösbar	über hellen Wüstengebieten
Multispektral, Nutzung der Polarisisation, verschiedene Blickwinkel			
POLDER	Aerosolindex über Land, AOD und Ang.-Koeff. über Wasser	Nutzung der Polarisationsinformation	kurze Lebensdauer des Instruments

Tab. 13: Übersicht über Stärken und Schwächen der einzelnen Verfahren

C Brechungsindex organischer Substanzen

In den folgenden Tabellen wird eine Übersicht von in der Literatur identifizierten organischen Aerosolsubstanzen gegeben. Die Substanznamen sind teilweise sowohl in Deutsch als auch in Englisch aufgeführt, um die Zuordnung mit der englischsprachigen Literatur zu gewährleisten. Im Falle allgemein gebräuchlicher Trivialnamen wird zusätzlich dieser Name angegeben. Die Einstufung in wasserlöslich (WASO) bzw. wasserunlöslich (INSO) beruhen auf Saxena (1995) und die Werte für den Realteil des Brechungsindex stammen aus Lide (1999).

Primäres organisches Aerosol

Name	Sonst. Name	n	Quelle	Bemerkung
Decan	C10 Alkan	1.4102	Kendall 2001	INSO
Undecan	C11 Alkan	1.4398	Kendall 2001	INSO
Dodecan	C12 Alkan	1.4218	Hahn 1980, Kendall 2001	INSO
Tridecan	C13 Alkan	1.4258	Hahn 1980, Kendall 2001	INSO
Tetradecan	C14 Alkan	1.429	Hahn 1980, Kendall 2001, Tsapakis 2002	INSO
Pentadecan	C15 Alkan	1.4315	Simoneit 1986, Hahn 1980, Kendall 2001, Tsapakis 2002	INSO
Hexadecan	C16 Alkan	1.4345	Simoneit 1986, Hahn 1980, Kendall 2001, Pio 2001, Tsapakis 2002	häufig bei Tsapakis (Chile), INSO
Heptadecan	C17 Alkan	1.4369	Simoneit 1986, Hahn 1980, Kendall 2001, Pio 2001, Tsapakis 2002	häufig bei Tsapakis (Chile), INSO
Octadecan	C18 Alkan	1.439	Simoneit 1986, Hahn 1980, Kendall 2001, Pio 2001, Tsapakis 2002, Yassaa 2001	INSO
Nonadecan	C19 Alkan	1.4409	Simoneit 1986, Hahn 1980, Kendall 2001, Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Tsapakis 2002, Yassaa 2001	INSO
Eicosan	C20 Alkan	1.4425	Simoneit 1986, Hahn 1980, Kendall 2001, Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Tsapakis 2002, Yassaa 2001	INSO
Heneicosan	C21 Alkan	1.4441	Simoneit 1986, Hahn 1980, Kendall 2001, Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Tsapakis 2002, Yassaa 2001	häufig bei Kendall, INSO

Docosan	C22 Alkan	1.4455	Simoneit 1986, Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Kendall 2001, Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 2000, Tsapakis 2002, Yassaa 2001	häufig bei Kendall, INSO
Tricosan	C23 Alkan	1.4468	Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Kendall 2001, Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 2000, Tsapakis 2002, Azevedo 2002, Yassaa 2001	häufig bei Kendall und Azevedo, INSO
Tetracosan	C24 Alkan	1.4283	Simoneit 1986, Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Kendall 2001, Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 2000, Azevedo 2002, Tsapakis 2002, Yassaa 2001	häufig bei Kendall und Azevedo, INSO
Pentacosan	C25 Alkan	1.4491	Simoneit 1986, Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Kendall 2001, Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 2000, Azevedo 2002, Tsapakis 2002	häufig bei Kendall und Azevedo, INSO
Hexacosan	C26 Alkan	1.4357	Simoneit 1986, Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Kendall 2001, Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 2000, Azevedo 2002, Tsapakis 2002, Yassaa 2001	häufig bei Kendall und Azevedo, INSO
Heptacosan	C27 Alkan	1.4335	Simoneit 1986, Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Kendall 2001, Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Alves 2001, Lang 2002, Azevedo 2002, Tsapakis 2002, Yassaa 2001	häufig bei Kendall und Azevedo, max. bei Pio, Alves und Lang 2002, INSO
Octacosan	C28 Alkan	1.433	Simoneit 1986, Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Kendall 2001, Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Azevedo 2002, Tsapakis 2002, Yassaa 2001	häufig bei Kendall und Azevedo, INSO

Nonacosan	C29 Alkan	1.4529	Simoneit 1986, Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Kendall 2001, Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Alves 2001, Lang 2002, Azevedo 2002, Tsapakis 2002, Yassaa 2001	häufig bei Kendall und Azevedo, max. bei Pio, Alves und Lang, INSO
Triacontan	C30 Alkan	1.4352	Simoneit 1986, Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Kendall 2001, Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Azevedo 2002, Tsapakis 2002, Yassaa 2001	häufig bei Azevedo, INSO
Hentriacontan	C31 Alkan	1.4278	Simoneit 1986, Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Kendall 2001, Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Lang 2002, Azevedo 2002, Tsapakis 2002, Yassaa 2001	häufig bei Radzibintbas und Azevedo, max. bei Pio und Lang, INSO
Dotriacontan	C32 Alkan	1.455	Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Kendall 2001, Pio 2001, Seinfeld/ Pandis 1998, Tsapakis 2002, Yassaa 2001	häufig bei Radzibintbas INSO
Tritriacontan	C33 Alkan		Simoneit 1986, Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Kendall 2001, Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Tsapakis 2002, Yassaa 2001	häufig bei Radzibintbas, INSO
Tetratriacontan	C34 Alkan	1.4296	Simoneit 1986, Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Kendall 2001, Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Tsapakis 2002	INSO
Pentatriacontan	C35 Alkan	1.4568	Simoneit 1986, Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Tsapakis 2002	INSO
Hexatriacontan	C36 Alkan	1.4397	Radzi Bin Abas 1996, Pio 2001, Seinfeld/Pandis 1998	INSO
Heptatriacontan	C37 Alkan		Radzi Bin Abas 1996, Pio 2001, Seinfeld/Pandis 1998	INSO
Octatriacontan	C38 Alkan		Radzi Bin Abas 1996, Pio 2001, Seinfeld/Pandis 1998	INSO

XII

Nonatriacontan	C39 Alkan		Radzi Bin Abas 1996, Pio 2001, Seinfeld/Pandis 1998	INSO
Tetracontan	C40 Alkan		Radzi Bin Abas 1996, Pio 2001, Seinfeld/Pandis 1998	INSO
1-Nonadecen	C19 Alken		Tsupakis 2002	INSO
1-Eicosen	C20 Alken	1.444	Tsupakis 2002	INSO
1-Heneicosen	C21 Alken		Tsupakis 2002	INSO
1-Docosen	C22 Alken		Tsupakis 2002	max in Tsupakis , INSO
1-Tricosen	C23 Alken		Simoneit 2000, Tsupakis 2002	INSO
1-Tetracosen	C24 Alken		Simoneit 2000, Tsupakis 2002	max in Tsupakis (Chile) , INSO
1-Pentacosen	C25 Alken		Simoneit 2000, Tsupakis 2002	INSO
1-Hexacosen	C26 Alken		Simoneit 2000, Tsupakis 2002	INSO
1-Heptacosen	C27 Alken		Tsupakis 2002	INSO
6,10,14-trimethyl-pentadecan-2-one			Simoneit 1986	häufigstes Keton, INSO
6,10 dimethyl-undecan-2-one			Simoneit 1986	INSO
Eicosanal	C20 Alkanal		Pio 2001	INSO
Heneicosanal	C21 Alkanal		Pio 2001	INSO
Docosanal	C22 Alkanal		Pio 2001	INSO
Tricosanal	C23 Alkanal		Pio 2001	INSO
Tetracosanal	C24 Alkanal		Pio 2001	INSO
Pentacosanal	C25 Alkanal		Pio 2001	INSO
Hexacosanal	C26 Alkanal		Pio 2001, Seinfeld/Pandis 1998	INSO
Heptacosanal	C27 Alkanal		Pio 2001	INSO
Octacosanal	C28 Alkanal		Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998	INSO
Nonacosanal	C29 Alkanal		Pio 2001	INSO
Triacontanal	C30 Alkanal		Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998	INSO
Hentriacontanal	C31 Alkanal		Pio 2001	INSO
Dotriacontanal	C32 Alkanal		Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998	INSO
Tritriacontanal	C33 Alkanal		Pio 2001	INSO
Tetratriacontanal	C34 Alkanal		Pio 2001	INSO
Pentatriacontanal	C35 Alkanal		Pio 2001	INSO
Decanol	C10 Alkanol	1.4372	Pio 2001, Simoneit 1986	WASO
Dodecanol	C12 Alkanol	1.44	Radzi Bin Abas 1996, Pio 2001, Simoneit 1986	WASO
Tridecanol	C13 Alkanol	1.4188	Radzi Bin Abas 1996	WASO
Tetradecanol	C14 Alkanol	1.4444	Radzi Bin Abas 1996, Pio 2001, Simoneit 1986	WASO
Pentadecanol	C15 Alkanol	1.4463	Radzi Bin Abas 1996	WASO
Hexadecanol	C16 Alkanol	1.4479	Radzi Bin Abas 1996, Pio 2001, Simoneit 1986	WASO

Heptadecanol	C17 Alkanol	1.4407	Radzi Bin Abas 1996	WASO
Octadecanol	C18 Alkanol	1.429	Radzi Bin Abas 1996, Pio 2001, Simoneit 1986	WASO
Nonadecanol	C19 Alkanol	1.4328	Radzi Bin Abas 1996	WASO
Eicosanol	C20 Alkanol	1.435	Radzi Bin Abas 1996, Pio 2001, Simoneit 1986	WASO
Heneicosanol	C21 Alkanol		Radzi Bin Abas 1996	WASO
Docosanol	C22 Alkanol		Radzi Bin Abas 1996, Pio 2001, Simoneit 1986	WASO
Tricosanol	C23 Alkanol		Radzi Bin Abas 1996	WASO
Tetracosanol	C24 Alkanol		Radzi Bin Abas 1996, Pio 2001, Simoneit 1986,2000	Dominant bei Simoneit, WASO
Pentacosanol	C25 Alkanol		Radzi Bin Abas 1996	WASO
Hexacosanol	C26 Alkanol		Radzi Bin Aba 1996, Pio 2001, Alves 2001, Simoneit 1986	Max bei Alves, WASO
Heptacosanol	C27 Alkanol		Radzi Bin Abas 1996, Alves 2001	Max bei Alves 2001, WASO
Octacosanol	C28 Alkanol		Radzi Bin Aba 1996, Pio 2001, Alves 2001, Simoneit 1986	Max bei Alves 2001, WASO
Nonacosanol	C29 Alkanol		Radzi Bin Abas 1996	WASO
Triacontanol	C30 Alkanol		Radzi Bin Abas 1996, Pio 2001, Simoneit 1986	WASO
Hentriacontanol	C31 Alkanol		Radzi Bin Abas 1996	WASO
Dotriacontanol	C32 Alkanol		Radzi Bin Abas 1996, Pio 2001, Simoneit 1986	WASO
Tritriacontanol	C33 Alkanol		Radzi Bin Abas 1996	WASO
Tetratriacontanol	C34 Alkanol		Radzi Bin Abas 1996, Pio 2001, Simoneit 1986	WASO
Formic acid, methanoic acid, Ameisensäure, Methansäure	C1 Alkansäure	1.3714	Yu 2000 zitiert Andrae 1988, Kavou-ras 1998	INSO
Acetic acid, ethanoic acid, Essigsäure, Ethansäure	C2 Alkansäure	1.372	Yu 2000, Kavouras 1998	INSO
Propanoic acid, Propionsäure, Propansäure	C3 Alkansäure	1.3809	Yu 2000	INSO
Hexanoic acid, Capronsäure, Hexansäure	C6 Alkansäure	1.4163	Seinfeld und Pandis 1998	INSO
Heptanoic acid, Heptansäure	C7 Alkansäure	1.417	Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998	INSO
Octanoic acid, Octansäure	C8 Alkansäure	1.4285	Seinfeld und Pandis 1998	INSO
Nonanoic acid, pelargonic acid, Pelargonsäure, Nonansäure	C9 Alkansäure	1.4343	Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Tsupakis 2002	INSO
Decanoic acid, capric acid, Decansäure, Caprinsäure	C10 Alkan-säure	1.4288	Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 1986, Tsupakis 2002	INSO
Undecanoic acid, Undecansäure	C11 Alkan-säure	1.4294	Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Tsupakis 2002	INSO

XIV

Dodecanoic acid, lauric acid, Dodecansäure, Laurinsäure	C12 Alkan-säure	1.4183	Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 1986, Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Limbeck 1999, Tsupakis 2002	INSO
Tridecanoic acid, Tridecansäure	C13 Alkan-säure	1.4286	Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Tsupakis 2002	INSO
Tetradecanoic acid, myristic acid, Tetradecansäure, Myristinsäure	C14 Alkan-säure	1.4723	Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 1986, Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Limbeck 1999, Tsupakis 2002, Yassaa 2001	INSO
Pentadecanoic acid, Pentadecansäure	C15 Alkan-säure	1.428	Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Tsupakis 2002, Limbeck 1999	INSO
Hexadecanoic acid, palmitic acid, Hexadecansäure, Palmitinsäure	C16 Alkan-säure	1.43345	Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 1986, Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Limbeck 1999, Lang 2002, Azevedo 2002, Tsupakis 2002, Yassaa 2001	häufig laut Hahn, Lang und Azevedo, max laut Tsupakis, INSO
Heptadecanoic acid, margaric acid, Heptadecansäure	C17 Alkan-säure	1.4342	Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Tsupakis 2002	INSO
Octadecanoic acid, stearic acid, Octadecansäure, Stearinsäure	C18 Alkan-säure	1.4299	Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 1986, Hahn 1980, Lang 2002, Radzi Bin Abas 1996, Limbeck 1999, Tsupakis 2002, Yassaa 2001, Limbeck 1999	max bei Lang, INSO
Nonadecanoic acid, Nonadecansäure	C19 Alkan-säure		Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Tsupakis 2002	INSO
Eicosenoic acid, arachidic acid, Eicosansäure	C20 Alkan-säure	1.425	Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 1986, Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Tsupakis 2002, Yassaa 2001	INSO
Heneicosanoic acid, Heneicosansäure	C21 Alkan-säure		Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Tsupakis 2002	INSO
Docosanoic acid, behenic acid, Docosansäure	C22 Alkan-säure	1.427	Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 1986, Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Tsupakis 2002	INSO
Tricosanoic acid, Tricosansäure	C23 Alkan-säure		Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Tsupakis 2002	INSO

Tetracosanoic acid, Tetracosansäure	C24 Alkansäure	1.4287	Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 1986, Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Simoneit 2000, Tsupakis 2002, Yassaa 2001	Dominant in Simoneit, INSO
Pentacosanoic acid, Pentacosansäure	C25 Alkansäure		Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Tsupakis 2002	INSO
Hexacosanoic acid, Hexacosansäure	C26 Alkansäure	1.4301	Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 1986, Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Simoneit 2000, Tsupakis 2002, Yassaa 2001	Dominant in Simoneit 2000, INSO
Heptacosanoic acid, Heptacosansäure	C27 Alkansäure		Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Tsupakis 2002	INSO
Octacosanoic acid, Octacosansäure	C28 Alkansäure	1.4313	Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 1986, Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Tsupakis 2002	INSO
Nonacosanoic acid, Nonacosansäure	C29 Alkansäure		Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998, Tsupakis 2002	INSO
Triacontanoic acid, Triacontansäure	C 30 Alkansäure	1.4323	Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 1986, Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996, Tsupakis 2002	INSO
Hentriacontanoic acid, Hentriacontansäure	C31 Alkansäure		Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998	INSO
Dotriacontanoic acid, Dotriacontansäure	C32 Alkansäure		Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 1986, Hahn 1980, Radzi Bin Abas 1996	INSO
Tritriacontanoic acid, Tritriacontansäure	C33 Alkansäure		Pio 2001, Seinfeld und Pandis 1998	INSO
Tetratriacontanoic acid, Tetratriacontansäure	C34 Alkansäure		Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 1986	INSO
Hexadecenoic acid, Hexadecensäure	C16 Alkensäure		Limbeck 1999	INSO
9-Octadecenoic acid, oleic acid, 9-Octadecensäure	C18 Alkensäure	1.4582	Limbeck 1999	INSO
Primanthren			Simoneit 2000	
Trimethylphen-anthren			Simoneit 2000	

Reaktionsprodukte von Aromaten

Name	Sonst. Name	n	Quelle	Bemerkung
Sabinaketon			Warscheid 2001	dominant, INSO
Caric acid, Carensäure, Carendicarbonsäure	C9 Dicarbonsäure		Koch 2000	WASO
Sabinic acid, Sabinendicarbonsäure	C9 Dicarbonsäure		Koch 2000, Warscheid 2001	dominant, WASO

Terpinolic acid , Terpentinsäure	C6 Dicarbonsäure		Koch 2000	WASO
Caronic acid, Caronsäure			Koch 2000	
Caralic acid, Caralsäure			Koch 2000	
Norcaric acid, Norcarensäure, Norcarondicarbonsäure			Koch 2000	
Maleic acid, Maleinsäure, cis-2-Butendicarbonsäure	2-Butenedioic acid		Kawamura 1999	
Fumaric acid, Fumarsäure, trans-2-Butendicarbonsäure			Kawamura 1999	
Benzoic acid, Benzoessäure, Benzolcarbonsäure		1.504	Seinfeld und Pandis 1998	
3,4 Dimethoxybenzoic acid, 3,4-Dimethoxybenzolcarbonsäure	Veratric acid		Seinfeld und Pandis 1998	
4-Methylbenzoic acid, 4-Methylbenzolcarbonsäure	m-toloic acid		Seinfeld und Pandis 1998	
4-Hydroxy-3-methoxyphenylacetic acid, 4-Hydroxy-3-Methoxyphenylethansäure			Seinfeld und Pandis 1998	
2-Hydroxybenzoic acid3,4- Dimethoxyphenylacetic acid, 2-Hydroxybenzoessäure-3,4- Dimethoxyphenylethansäure			Seinfeld und Pandis 1998	
3,4-Dimethoxyphenylacetic acid, 3,4- Dimethoxyphenylethansäure			Seinfeld und Pandis 1998	
3,5-Dimethylbenzoic acid, 3,5 Dime- thylbenzoessäure			Seinfeld und Pandis 1998	
2-Methylbenzoic acid, 2- Methylbenzoessäure		1.512	Seinfeld und Pandis 1998	
3-Methylbenzoic acid, 3- Methylbenzoessäure		1.509	Seinfeld und Pandis 1998	
2-Methylbenzaldehyd		1.5462	Seinfeld und Pandis 1998	INSO
3-Methylbenzaldehyd		1.5413	Seinfeld und Pandis 1998	INSO
4-Methylbenzaldehyd		1.5454	Seinfeld und Pandis 1998	INSO
Dimethylbenzaldehyd			Seinfeld und Pandis 1998	INSO
Trimethylbenzaldehyd			Seinfeld und Pandis 1998	INSO
1,4-Benzoldicarboxyaldehyd			Seinfeld und Pandis 1998	INSO
3-Methoxybenzaldehyd		1.553	Seinfeld und Pandis 1998	INSO
2-Hydroxybenzaldehyd		1.574	Seinfeld und Pandis 1998	INSO
3-Methoxy-4-Hydroxybenzaldehyd			Seinfeld und Pandis 1998	INSO
4-Hydroxy-3,5-Dimethoxybenzaldehyd			Seinfeld und Pandis 1998	INSO
3,4,5-Trimethoxybenzaldehyd			Seinfeld und Pandis 1998	INSO
3,4-Dimethoxybenzaldehyd			Seinfeld und Pandis 1998	INSO
Dehydroabetic acid			Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 2000	häufig bei Simoneit
13-Isopropyl-5 α -Podocarpa-16-			Seinfeld und Pandis 1998	

Hydroxy-6,8,11,13-Tetraensäure				
18-Hydroxy-8,15-Pimaradiensäure			Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 2000	häufig bei Simoneit
Pimaric acid, Pimarinsäure			Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 2000	häufig bei Simoneit
Isopimaric acid, Iso-Pimarinsäure			Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 2000	häufig bei Simoneit
7-Oxodehydroabetic acid			Seinfeld und Pandis	
Sandaracopimaric acid			Seinfeld und Pandis 1998, Simoneit 2000	häufig bei Simoneit
1,2-Benzenedicarboxylic acid, phtalic acid, 1,2-Benzoldicarbonsäure, Phtalinsäure			Seinfeld und Pandis 1998	WASO
1,3-Benzenedicarboxylic acid, isophta- lic acid, 1,3-Benzoldicarbonsäure, Iso- Phtalinsäure			Seinfeld und Pandis 1998	WASO
4-Methyl-1,2-benzenedicarboxylic acid, 4-Methyl-1,2-Benzoldicarbonsäure			Seinfeld und Pandis 1998	WASO
1,3,5-Benzenetricarboxylic acid, trime- sic acid, 1,3,5-Benzoltricarbonsäure			Seinfeld und Pandis 1998	WASO
Acenaphthylene, Acenaphten			Dos Santos 2002, Hahn 1980	
Fluoren			Dos Santos 2002, Hahn 1980	
Phenanthren		1.5943	Dos Santos 2002, Azevedo 2002, Hahn 1980	häufig bei Azevedo
Anthracen			Dos Santos 2002, Hahn 1980	
Fluoranthren			Dos Santos 2002, Azevedo 2002, Hahn 1980	häufig bei Azevedo
Pyren			Dos Santos 2002, Azevedo 2002, Hahn 1980	häufig bei Azevedo
Benzo(a)anthracen			Dos Santos 2002	
Chrysen	1,2- Benzophenanthren		Dos Santos 2002, Azevedo 2002	häufig bei Azevedo
Benzo(b)fluoranthren			Dos Santos 2002, Azevedo 2002	häufig bei Azevedo
Benzo(k)fluoranthren			Dos Santos 2002, Azevedo 2002	häufig bei Azevedo
Benzo(a)pyren			Dos Santos 2002	
Naphtalen			Hahn 1980	
2-Methylnaphthalen			Hahn 1980	
2-Methylantracen			Hahn 1980	
1,2-Benzofluoren			Hahn 1980	
1,2-Benzoanthracen			Hahn 1980	
3,4-Benzopyren			Hahn 1980	
1,2-Benzopyren			Hahn 1980	
Perylen			Hahn 1980	

Reaktionsprodukte von Alkanen

Name	Sonst. Name	n	Quelle	Bemerkung
Octanal	C8 Alkanal	1.4217	Pio 2001	INSO
Nonanal	C9 Alkanal	1.4273	Seinfeld und Pandis 1998, Pio 2001	INSO
Decanal	C10 Alkanal	1.4287	Seinfeld und Pandis 1998, Pio 2001	INSO
Undecanal	C11 Alkanal	1.452	Seinfeld und Pandis 1998, Pio 2001	INSO
Dodecanal	C12 Alkanal	1.435	Pio 2001	INSO
Tridecanal	C13 Alkanal	1.4384	Seinfeld und Pandis 1998, Pio 2001	INSO
Tetradecanal	C14 Alkanal		Pio 2001	INSO
Pentadecanal	C15 Alkanal		Seinfeld und Pandis 1998, Pio 2001	INSO
Hexadecanal	C16 Alkanal		Pio 2001	INSO
Heptadecanal	C17 Alkanal		Pio 2001	INSO
Octadecanal	C18 Alkanal		Pio 2001	INSO
Nonadecanal	C19 Alkanal		Pio 2001	INSO
Oxalic acid, Oxalsäure, Ethandisäure	C2 Dicarbonsäure, $C_2H_2O_4$, ethanedioic acid		Saxena 1998, Kawamura 1999, Wang 2002, Limbeck 1999, Yu 2000, Krivacsy 2001, Kerminen 2000, Röhl 2001	WASO, dominant
Malonic acid, Propanedioic acid, Malonsäure, Propandisäure	C3 Dicarbonsäure, $C_3H_4O_4$		Kawamura 1999, Seinfeld und Pandis 1998, Wang 2002, Limbeck 1999, Krivacsy 2001, Kerminen 2000, Röhl 2001, Pio 2001	Dominant im maritimen Hintergrund-aerosol, WASO
Succinic acid, Butanedioic acid, Bernsteinsäure, Butandisäure	C4 Dicarbonsäure, $C_4H_6O_4$	1.45	Saxena 1998, Kawamura 1999, Seinfeld und Pandis 1998, Wang 2002, Limbeck 1999, Gelencser 1999, Kerminen 2000, Röhl 2001, Pio 2001	dominant über Kontinenten laut Kawamura, WASO
Pentanedioic acid, glutaric acid, Glutarsäure, Pentandisäure	C5 Dicarbonsäure	1.4188	Kawamura 1999, Seinfeld und Pandis 1998, Wang 2002, Limbeck 1999, Gelencser 1999, Röhl 2001	WASO
Hexanedioic acid, adipic acid, Adipinsäure, Hexandisäure	C6 Dicarbonsäure		Saxena 1998, Kawamura 1999, Seinfeld und Pandis 1998, Wang 2002, Tsapakis 2002, Limbeck 1999, Gelencser 1999, Pio 2001	WASO
Pimelic acid, Pimelinsäure, Heptandisäure	C7 Dicarbonsäure		Kawamura 1999, Wang 2002, Gelencser 1999	WASO
Octanedioic acid, suberic acid, Suberinsäure, Octandisäure	C8 Dicarbonsäure		Kawamura 1999, Seinfeld und Pandis 1998, Wang 2002, Tsapakis 2002, Gelencser 1999	WASO
Noanaedioic acid, azelaic acid, Azelainsäure, Nonandisäure	C9 Dicarbonsäure	1.4303	Kawamura 1999, Seinfeld und Pandis 1998, Wang 2002, Gelencser 1999, Tsapakis 2002	WASO

Sebalic acid, Sebacinsäure, Decandisäure	C10 Dicarbonsäure		Kawamura 1999, Wang 2002	WASO
Methylbutanedioic acid, methylsuccinic acid, Methyl-Bernsteinsäure, Methyl-Butandisäure		1.4303	Seinfeld und Pandis 1998	
Methylpentanedioic acid, methylglutaric acid, Methyl-Pentandisäure, Methyl-Glutarsäure (kein Index nötig da drehinvariant)			Seinfeld und Pandis 1998	
Hydroxybutanedioic acid, hydroxysuccinic acid, Hydroxy-Bernsteinsäure, Hydroxy-Butandisäure			Seinfeld und Pandis 1998	
3-isopropyl-pentanedioic acid, 3-Isopropyl-Pentandisäure, 3-Isopropyl-Glutarsäure			Kubatova 2000	
3-acetyl-pentanedioic acid, 3-Acetyl-Pentandisäure, 3-Acetyl-Glutarsäure			Kubatova 2000	
3-acetyl-hexanedioic acid, 3-Acetyl-Adipinsäure, 3-Acetyl-Hexandisäure			Kubatova 2000	
3-carboxy-heptanedioic acid, 3-Carboxy-Heptandisäure, 3-Carboxy-Pimelinsäure			Kubatova 2000	
Methylglyoxal, Methyl-Ethandial, Methyl-Glyoxal			Wang 2002	INSO
2-oxo-malonaldehyde, 2-Oxo-Malonaldehyd			Wang 2002	INSO
2-oxo-propanoic acid, pyruvic acid, 2-Oxo-Propansäure, Pyrovat	Dicarbonsäure	1.428	Limbeck 1999, Yu 2000	WASO
Phthalic acid, 1,2-Benzenedicarboxylic acid, 1,2-Benzendicarbonsäure, Phthalsäure	Dicarbonsäure		Limbeck 1999	WASO

Reaktionsprodukte von Alkenen

Name	Sonst. Name	n	Quelle	Bemerkung
Heptanal	Heptaldehyd	1.4113	Forstner 1997	INSO
Heptonic acid, Heptansäure			Forstner 1997	
Dihydro-5-propyl-2(3H)-furanone, Dihydro-5-Propyl-2(3H)-Furanon			Forstner 1997	
Nonanal	Nonaldehyd	1.4273	Forstner 1997	INSO
Nonanoic acid, Nonansäure, Pelargonsäure	Pelargonic acid	1.4343	Forstner 1997	
Dihydro-5-Pentyl-2(3H)Furanon			Forstner 1997	
Cis-9-octadenoid acid			Lang 2002	
Hexadecenoic acid, palmitoleic acid, Hexadecensäure			Seinfeld und Pandis 1998, Tsapakis 2002	
Linoleic acid (18:2); 9,12-octadecadienoic acid, Linolsäure, 9,12-Octadeciensäure		1.4699	Seinfeld und Pandis 1998, Tsapakis 2002	
Linolenic acid, 9,12,15-Octadecatrienoic acid, Linolensäure, 9,12,15-Octadecatriensäure		1.48	Seinfeld und Pandis 1998	
Octadecenoic acid, oleic acid, Ölsäure		1.4582	Seinfeld und Pandis 1998, Tsapakis 2002	

Reaktionsprodukte von α -Pinen

Name	Sonst. Name	m	Quelle	Bemerkung
Nopinone	6,6-Dimethyl-Bicyclo[3,1,1]Heptan-2-one		Seinfeld und Pandis 1998, Kavouras 1998 und 1999, Christoffersen 1998, Pio 2001	
Pinanediol			Seinfeld und Pandis 1998	
Pinonic acid, Pinonsäure	2,2-dimethyl-(3-acetyl-cyclobutyl)-ethanoic acid		Seinfeld und Pandis 1998, Kavouras 1998, Christoffersen 1998, Jang 1999, O'Dowd 2002, Pio 2001, Kavouras 1999, Koch 2000	WASO laut Hoffmann
5-(1-hydroxy-1methylethyl)-2-methyl-2-cyclohexen-1-one			Seinfeld und Pandis 1998	
Pinic acid, Pinsäure	C9 Dicarbonsäure, 2,2-dimethyl-(3-carboxy-cyclobutyl)-ethanoic acid		Warscheid 2001, Christoffersen 1998, Jenkin 2000, O'Dowd 2002, Pio 2001, Kavouras 1999, Koch 2000	dominant laut Warscheid, WASO
Pinonaldehyd	2,2-dimethyl-3-acetyl-cyclubutyl-ethanal		Warscheid 2001, Kavouras 1998, Pio 2001, Kavouras 1999	dominant laut Warscheid
Nor-pinonic acid, Norpinonsäure	2-dimetyl-(3-acetyl-cyclobutyl)-methanoic acid		Jang 1999, Kavouras 1999, Koch 2000	
Pinalic acid			Koch 2000	
Nor-pinic acid, Norpinsäure			Koch 2000	

Reaktionsprodukte von Limonen

Name	Sonst. Name	n	Quelle	Bemerkung
Limonic acid, Limonensäure	C9 Dicarbonsäure		Koch 2000	WASO

Tab. 14: Übersicht zum Brechungsindex organischer Substanzen

D Literatur

- ACKERMANN, I.J., H. HASS, M. MEMMESHEIMER, C. ZIEGENBEIN, A. Ebel (1995): The parameterization of the sulfate-nitrate-ammonia aerosol system in the long-range transport model EURAD, *Meteorolog. Atmos. Phys.*, 57, 101-114
- ACKERMANN, I.J., H. HASS, M. MEMMESHEIMER, A. EBEL, F.S. BINKOWSKI, U. SHANKAR (1998): MADE: Modal Aerosol Dynamics Model for Europe; development and first applications. *Atmos. Environm.*, 32 (17), 2981-2999
- ALVES, C., C. PIO, A. DUARTE (1999) The organic composition of air particulate matter from rural and urban portuguese areas, *Phys. Chem. Earth (B)*, Vol 24, No 6, 705-709
- ANDERSON, T.L., R.J. CHARLSON, D.M. WINKER, J.A. OGREN, K. HOLMEN (2003): Mesoscale Variations of Tropospheric Aerosols, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 60, 119-136
- ANDERSSON-SKÖLD, Y., D. SIMPSON (2001): Secondary organic aerosol formation in northern Europe: A model study, *Journal of Geophysical Research*, 106, D7, 7357-7374
- ARELLANO, A.F. Jr., K. RAEDER, J.L. ANDERSON, P.G. HESS, L.K. EMMONS, D.P. EDWARDS, G.G. Pfister, T.L. CAMPOS, G.W. SACHSE (2007): Evaluating model performance of an ensemble-based chemical data assimilation system during INTEX-B field mission, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 5695-5710
- BEAL, D., F. BARET, C. BACOUR, K. PAVAGEAU, X. F. GU (2005): A method for aerosol retrieval from the spectral variation in the visible and near infrared. Application to the MERIS sensor, *31st International Symposium on Remote Sensing of Environment*, 20 – 24 June 2005, Sankt Petersburg, Russland, <http://www.isprs.org/publications/related/ISRSE/html/welcome.html>
- BERDOWSKI, J.J.M, W. MULDER, C. VELDT, A.J.H. VISSCHEDIJK, P.Y.J. ZANDVELD (1996): Particulate matter emissions (PM₁₀ – PM_{2.5} – PM_{0.1}) in Europe in 1990 and 1993, TNO-report TNO-MEP-R96/472
- BINKOWSKI, F.S., U. SHANKAR (1995): The regional particulate matter model, 1. Model description and preliminary results, *Journ. Geophys. Res.*, 100, 26191-26209
- BINKOWSKI, F.S. (1999): Aerosols in Models-3 CMAQ, Kapitel 10 in: Science algorithms of the EPA Models-3 Community Multi-scale Air Quality (CMAQ) Modelling System, United States Environmental Protection Agency, report EPA/600/R-99/030, March 1999, Eds. D.W. BYUN und J.K.S. CHING, <http://www.epa.gov/asmdnerl/models3/doc/science/science.html>
- BOHREN, C.F., D.R. HUFFMANN (1983): Absorption and Scattering of Light by Small Particles, John Wiley & Sons, Inc.
- BOUTTIER, F., P. COURTIER (1999): Data assimilation concepts and methods, Meteorological Training Course Lecture Series, Europäisches Zentrum für Mittelfrist-Wettervorhersage (ECMWF)
- BREITKREUZ, H. (2006), persönliche Kommunikation

- BREITKREUZ, H (2008): Solare Strahlungsprognosen für energiewirtschaftliche Anwendungen – Der Einfluß von Aerosolen auf das sichtbare Strahlungsangebot, Promotionsarbeit, Univ. Würzburg
- BRÖSAMLE, H., H. MANNSTEIN, C. SCHILLINGS, F. TRIEB (2001): Assessment of solar electricity potentials in North Africa based on satellite data and a geographic information system, *Solar Energy*, 70 (1), 1-12
- BUILTJES, P.J.H., C. BORREGO, A.C. CARVALHO, A. EBEL, M. MEMMESHEIMER, H. FEICHTNER, A. MÜNZENBERG, E. SCHALLER, Z. ZLATEV (2003): Global and Regional Atmospheric Modeling. Overview over the Subproject GLOREAM. In: Towards Cleaner Air for Europe – Science, Tools and Applications. Part 2: Overview from the Final Reports of EUROTRAC-2 Subprojects. Ed: P.M MIDGLEY, M. REUTHER, Markgraf Publishers, Weikersheim, 139-164
- BUCKINGHAM, J. (1984): Dictionary of organic compounds, Chapman & Hall, 5 Ed., ISBN 0-412-1700-0
- BUTTERFIELD, D. , P. QUINCEY, R. YARDLEY, P. HUGHEY, R. LIPSCOMBE (2007): 2006 Annual Report for the UK Black Smoke Network, NPS Report AS2, ISSN 1744-0602, April 2007, National Physical Laboratory, Teddington, TW11 0LW, UK
- CHRISTOFFERSEN, T.S., J. HJORTH, O. HORIE, N.R. JENSEN, D. KOTZIAS, L.L. MOLANDER, P. NEEB, L. RUPPERT, R. WINTERHALTER, A. VIRKKULA, K. WIRTZ, B.R. LARSEN (1998): Cis-pinic acid, a possible precursor for organic aerosol formation from ozonolysis of alpha-pinene, *Atm. Env.*, Vol 32, No 10, 1657-1661
- CLAQUIN, T., M. SCHULZ, Y. J. BALKANSKI (1999): Modeling the mineralogy of atmospheric dust sources, *Journ. Geophys. Res.*, 104, D18, 22243-22356
- COLLINS, W.D., P.J. RASCH, B.E. EATON, B.V. KHATTATOV, J.F. LAMARQUE (2001), Simulating aerosols using a chemical transport model with assimilation of satellite aerosol retrievals: Methodology for INDOEX, *Journ. Geophys. Res.*, 106 (D7), 7313 – 7336
- COURTIER, P., E. ANDERSSON, W. HECKLEY, J. PAILLEUX, D. VASILJEVIC, M. HAMRUD, A. HOLLINGSWORTH, F. RABIER, M. FISHER (1998): The ECMWF implementation of three-dimensional variational assimilation (3D-Var). Part 1: formulation, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 124, 1783-1807
- DALEY, R. (1991): Atmospheric Data Analysis, Cambridge Atmospheric and Space Science Series, Cambridge University Press, ISBN 0-521-38215-7
- DECESARI, S., M.C. FACCHINI, E. MATTA, F. LETTINI, M. MIRCEA, S. FUZZI, E. TAGLIAVINI, J.-P. PUTAUD (2001): Chemical features and seasonal variation of fine aerosol water-soluble organic compounds in the Po Valley, Italy, *Atm. Env.*, 35, 3691-3699
- DEUZE J. L., F. M. BREON, C. DEVAUX, P. GOLOUB (2001): Remote sensing of aerosols over land surfaces from POLDER-ADEOS-1, *Journ. Geophys. Res.*, 106, 4913-4926
- DUBOVIK, O., B. HOLBEN, T.F. ECK, A. SMIRNOV, Y.J. KAUFMAN, M.D. KING, D. TANRE, I. SLUTSKER (2002): Variability of Absorption and Optical Properties of Key Aerosol Types Observed in Worldwide Locations, *Journ. Atm. Sciences*, 59, 590 – 608
- EBEL, A. (1989): Entwicklung und Stand des EURAD-Vorhabens. In: Das EURAD-Modell: Aufbau und erste Ergebnisse, *Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*, Heft 61, 1-5

- EBEL, A., N. MOUSSIOPOULUS, K.H. BECKER, C.A. BORREGO, R. BOUSCAREN, P.J.H. BUILTJES, A. FLOSSMANN, U. HANSEN, M. HANTEL, H. HASS, D. POPPE, R. ROSSET (1997a): Air quality modelling and models in EUMAC: an overview. In: Transport and Chemical Transformation of Pollutants in the Troposphere. Eds. P. BORREL et al., Vol 7, Tropospheric Modelling and Emission Estimation, eds. A. EBEL, R. FRIEDRICH, H. ROHDE, 3-24
- EBEL, A., H. ELBERN, H. FELDMANN, H.J. JAKOBS, C. KESSLER, M. MEMMESHEIMER, A. OBERREUTHER, G. PIEKORZ (1997b): Air Pollution Studies within the EURAD Model System (3): EURAD – European Air Pollution Dispersion Model System. *Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*, Hrsg. A. EBEL, M. KERSCHGENS, F.M. NEUBAUER, P. SPETH, Heft Nr 120
- ELBERN, H., H. SCHMIDT, A. EBEL (1997): Variational data assimilation for tropospheric chemistry modeling, *Journ. Geophys. Res.*, 10 (D13), 15 967—15 985
- ELBERN, H., H. SCHMIDT (1999): A four-dimensional variational chemistry data assimilation scheme for Eulerian chemistry transport modeling, *Journ. Geophys. Res.*, 104, 18 583-18 598
- ELBERN, H., H. SCHMIDT, O. TALAGRAND, A. EBEL (2000): 4D-variational data assimilation with an adjoint air quality model for emission analysis, *Environ. Mod. Softw.*, 15, 539-548
- ELBERN, H., and H. SCHMIDT (2001): Ozone episode analysis by four-dimensional variational chemistry data assimilation, *Journ. Geophys. Res.*, 106 (D4), 3569-3590
- ELBERN, H., (2005): persönliche Kommunikation
- ELBERN, H., A. STRUNK, H. SCHMIDT, O. TALAGRAND (2007): Emission rate and chemical state estimateion by 4-dimensional variational inversion, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 3749-3769
- EMEP (2001): EMEP manual for sampling and chemical analysis, NILU-Report EMEP/CCC-Report 1/95, Referenz O-7726, März 1996, 1. Revision November 2001
- EMEP (2007): Transboundary particulate matter in Europe, Status report 4/2007, NILU-Report O-98134, August 2007
- ERRERA, Q., F. DAERDEN, S. CHABRILLAT, J.C. LAMBERT, W.A. LAHOZ, S. VISCARDY, S. BONJEAN, D. FONTEYN (2008): 4D-Var Assimilation of MIPAS chemical observations: ozone and nitrogen dioxide analyses, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 8, 8009-8057
- EVANS, B. T. N., FOURNIER, G.R. (1990): Simple approximation to extinction efficiency valid over all size parameters, *Appl. Optics*, 29, 31, 4666-4670
- EVENSEN, G. (1997): Advanced data assimilation for strongly nonlinear dynamics, *Monthly Weather Review*, 125, 1342-1354
- FORSTNER, H.J.L., R.C. FLAGAN, J.H. SEINFELD (1997): Molecular speciation of secondary organic aerosol from photooxidation of the higher alkenes: 1-octene and 1-decene, *Atm. Env.*, Vol 31, No 13, 1953-1964
- FUZZI, S., S. DECESARI, M.C. FACCHINI, E. MATTA, M. MIRCEA, E. TAGLIAVINI (2001): A simplified model of the water soluble organic component of atmospheric aerosols, *Geophys. Res. Lett.*, Vol 28, No 21, 4079-4082

- GANDIN, L. (1963): Objective analysis of meteorological fields, English translation, Israel Program of Scientific Translation, date of translation 1965
- GENEROSO, S., F.-M. BREON, F. CHEVALLIER, Y. BALKANSKI, M. SCHULZ, I. BEY (2007): Assimilation of POLDER aerosol optical thickness into the LMDz-INCA model: Implications for the Arctic aerosol burden, *J. Geophys. Res.* 112, D02311, doi:10.1029/2005JD006954
- GESELL G. (1989): An algorithm for snow and ice detection using AVHRR data: An extension to the APOLLO software package, *Int. J. Rem. Sens.*, 10, 897-905
- GHIL, M. (1989): Meteorological Data Assimilation for Oceanographers. Part I: Description and Theoretical Framework., *Dyn. of Atmos. Oceans*, 13, 171-218
- GILCHRIST, B., G. CRESSMAN (1954): An experiment in objective analysis, *Tellus*, 6, 309-318
- GILL, P., W. MURRAY, M. WRIGHT (1981): Practical optimization, Academic Press, 250pp.
- GONZALES C. R., J.P. VEEFKIND, G. de LEEUW (2000): Aerosol optical depth over Europe in August 1997 derived from ATSR-2 data, *Geophys. Res. Lett.*, 27, 955-958
- GRELL, G.A., J. DUDHIA, D.R. STAUFFER (1994): A description of the fifth-generation Penn State/NCAR mesoscale model (MM5), NCAR technical note, NCAR/TN-398+STR
- GUYON, P., O. BOUCHER, B. GRAHAM, J. BECK, O. L. MAYOL-BRACERO, G. C. ROBERTS, W. MAENHAUT, P. ARTAXO, M. O. ANDRAE (2003): Refractive index of aerosol particles over the Amazon tropical forest during LBA-EUSTACH 1999, *J. Aerosol Science*, 34, 883-907
- GUZZI, R., J. BURROWS, E. CATTANI, T. KURUSO, M. CERVINO, C. LEVONI, F. TORRICELLA (1998): GOME Cloud and Aerosol Data Products Algorithm Development - Final Report, ESA Contract 11572/95/NL/CN
- GUZZI R., G. BALLISTA, W. Di NICOLANTONIO, E. CARBONI (2001): Aerosol maps from GOME data, *Atmospheric Environment*, 35, 5079-5091
- HAHN, J. Hahn (1980): Organic Constituents of Natural Aerosols, in: Aerosols: Anthropogenic and Natural, Sources and Transport, ed. T.J. Kneip, P.J. Liroy, Annals of the New York Academy of Sciences, Vol 338, New York
- HARA, Y., K. YUMIMOTO, I. UNO, A. SHIMIZU, N. SUGIMOTO, Z. LIU, D.M. WINKER (2008): Asian dust outflow in the PBL and free atmosphere retrieved by NASA CALIPSO and an assimilated dust transport model, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 8, 8715-8742
- HERMAN, J. R., P.K. BHARTIA, O. TORRES, C. HSU, C. SEFTOR, E. CELARIER (1997): Global distributions of UV-absorbing aerosols from NIMBUS 7 TOMS data, *Journ. Geophys. Res.*, 102, 16911-16922
- HESS, M., P. KÖPKE, I. SCHULT (1998): Optical Properties of Aerosols and Clouds: The Software package OPAC, *Bull. Am. Met. Soc.*, 79, 831-844
- HIGURASHI, A., T. NAKAJIMA, B.N. HOLBEN, A. SMIRNOV, R. FROUIN, B. CHATENET (2000): A Study of Global Aerosol Optical Climatology with Two-Channel AVHRR Remote Sensing, *Journ. Clim.*, 13, 2011-2027

- HILDEMANN, L.M., W.F. ROGGE, G.R. CASS, M.A. MAZUREK, B.R.T. SIMONEIT (1996): Contribution of primary aerosol emissions from vegetation-derived sources to fine particle concentrations in Los Angeles, *Journ. Geophys. Res.*, Vol 101, No D14, 19541-19549
- HOFFMANN, T., J.R. ODUM, F. BOWMAN, D. COLLINS, D. KLOCKOW, R.C. FLAGAN, J.H. SEINFELD (1997): Formation of Organic Aerosols from the Oxidation of Biogenic Hydrocarbons, *Journ. Atm. Chem.*, 26, 189-222
- HOLBEN, B.N., T.F. ECK, I. SLUTSKER, D. TANRÉ, J.P. BUIS, A. SETZER, E. VERMOTE, J.A. REAGAN, Y.J. KAUFMAN, T. NAKAJIMA, F. LAVENU, I. JANKOWIAK, A. SMIRNOV (1998): AERONET: A federated instrument network and data archive for aerosol characterization, *Rem. Sens. Environm.*, 66, 1-16
- HOLBEN, B.N. und 22 weitere Autoren (2001): An emerging ground-based aerosol climatology: Aerosol optical depth from AERONET, *Journ. Geophys. Res.*, 106, D11, 12067-12097
- HOLZER-POPP, T., M. SCHROEDTER, G. GESELL (2002a): Retrieval of aerosol optical depth and type in the boundary layer over land and ocean from simultaneous GOME spectrometer and ATSR-2 radiometer measurements – 1. Model description, *Journ. Geophys. Res.*, 107 (D21), 4578–4594
- HOLZER-POPP, T., M. SCHROEDTER, G. GESELL (2002b): Retrieval of aerosol optical depth and type in the boundary layer over land and ocean from simultaneous GOME spectrometer and ATSR-2 radiometer measurements – 2. Case study application and validation, *Journ. Geophys. Res.*, 107 (D21), 4770–4777
- HOLZER-POPP, T. (2004): persönliche Kommunikation
- HOLZER-POPP, T. (2006): persönliche Kommunikation
- HOLZER-POPP, T., M. SCHROEDTER-HOMSCHEIDT, H. BREITKREUZ, D. MARTYNENKO, L. KLÜSER (2008): Synergetic aerosol retrieval from SCIAMACHY and AATSR onboard ENVISAT, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 7651-7672
- HORVATH, H. (1993): Atmospheric Light Absorption – A Review, *Atm. Environm.*, 27A, 3, 293-317
- HUSAR, R. B., J.M. PROSPERO, L.L. STOWE (1997): Characterization of tropospheric aerosols over the oceans with the NOAA advanced very high resolution radiometer optical thickness operational product, *Journ. Geophys. Res.*, 102, 16889-16909
- HUTCHISON, K. D., S. SMITH, S. FARUQUI (2004): The use of MODIS data and aerosol products for air quality prediction, *Atm. Environm.*, 38, 5057-5070
- IDE, K., P. COURTIER, M. GHIL, A.C. LORENC (1997): Unified Notation for Data Assimilation: Operational, Sequential and Variational, *Journ. Meteorol. Soc. Japan*, 75, (1B), 181-189
- JAKOBS, H.J., S. TILMES, A. HEIDEGGER, K. NESTER, G. SMIA TEK (2002): Short-term ozone forecasting with a network model system during Summer 1999. *Journ. Atmos. Chem.*, 42, 23-40
- JANG, M., R.M. KAMENS (1999): Newly characterized products and composition of secondary aerosols from the reaction of alpha-pinene with ozone, *Atm. Env.*, 33, 459-474

- JUNGE, C. (1952a): Gesetzmäßigkeiten in der Größenverteilung atmosphärischer Aerosole über dem Kontinent, Berichte des Deutschen Wetterdienstes der US-Zone
- JUNGE, C. (1952 b): Die Konstitution des atmosphärischen Aerosols, *Annalen der Meteorologie*, 1-55
- KAHN, R., R. WEST, D. McDONALD, B. RHEINGANS, M.I. MISHCHENKO (1997): Sensitivity of multiangle remote sensing observations to aerosol sphericity, *Journ. Geophys. Res.*, 102, 16861-16870
- KAUFMAN, Y.J., D. TANRE, L.A. REMER, E.F. VERMOTE, A. CHU, B.N. HOLBEN (1997): Operational remote sensing of tropospheric aerosol over land from EOS moderate resolution imaging spectrometer, *Journ. Geophys. Res.*, 102, 17051-17067
- KAVOURAS, I.G., N. MIHALOPOULOS, E. G. STEPHANOU (1998): Formation of atmospheric particles from organic acids produced by forests, *Nature*, Vol 395, 683-686
- KAWAMURA, K., F. SAKAGUCHI (1999): Molecular distributions of water soluble dicarboxylic acids in marine aerosols over the Pacific Ocean including tropics, *Journ. Geophys. Res.*, Vol 104, No D3, 3501-3509
- KENDALL, M., R.S. HAMILTON, J. WATT, I.D. WILLIAMS (2001): Characterisation of selected speciated organic compounds associated with particulate matter in London, *Atm. Env.*, 35, 2483-2495
- KHATTATOV, B.V., J. C. GILLE, L. V. LYJAK, G. P. BRASSEUR, V. L. DVORTSOV, A. E. ROCHE, J. W. WATERS (1999): Assimilation of photochemically active species and a case analysis of UARS data, *Journ. Geophys. Res.*, 104, 18715-18737
- KLASEN, D. (2003): Variational assimilation of stratospheric remote sounding data by an adjoint chemistry-transport-model, *Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*, Heft 155
- KOCH, S., R. WINTERHALTER, E. UHEREK, A. KOLLOFF, P. NEEB, G. K. MOORTGAT (2000): Formation of new particles in the gas-phase ozonolysis of monoterpenes, *Atm. Env.*, Vol 34, 4031-4042
- KRIEBEL, K.T., R. W. SAUNDERS, G. GESELL (1989): Optical properties of clouds derived from fully cloudy AVHRR pixels, *Beitr. Phys. Atmos.*, 62, 165-171
- KRIEBEL, K.T., G. GESELL, M. KÄSTNER, H. MANNSTEIN (2003): The cloud analysis tool APOLLO: Improvements and validation, *Int. Journ. Rem. Sens.*, 24 (12), 2389-2408
- KUBATOVA, A., R. VERMEYLEN, M. CLAEYS, J. CAFMEYER, W. MAENHAUT, G. ROBERTS, P. ARTAXO (2000): Carbonaceous aerosol characterization in the Amazon basin, Brazil: novel dicarboxylic acids and related compounds, *Atm. Env.*, 34, 5037-5051
- LAHOZ, W.A., A. J. GEER, S. BEKKI, N. BORMANN, S. CECCHERINI, H. ELBERN, Q. ERRERA, H.J. ESKES, D. FONTEYN, D.R. JACKSON, B. KHATTATOV, M. MARCHAND, S. MASSART, V.-H. PEUCH, S. RHARMILI, M. RIDOLFI, A. SEGERS, O. TALAGRAND, H.E. THORNTON, A.F. VIK, and T. VON CLARMANN (2007): The Assimilation of ENVISAT data (ASSET) Project, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 1773-1796
- LAMARQUE, J.F., B.V. KHATTATOV, J.C. GILLE, G. P. BRASSEUR (1999): Assimilation of measurements of air pollution from space (MAPS) CO in a global three-dimensional model, *Journ. Geophys. Res.*, 104 (D21), 26209-26218

- LANG, Q., Q. ZHANG, R. JAFFE (2002): Organic aerosols in the Miami area, USA: temporal variability of atmospheric particles and wet/dry deposition, *Chemosphere*, 47, 427-441
- LEROY, M., J.L. DEUZE, F.M. BREON, O. HAUTECOEUR, M. HERMAN, J.C. BURIEZ, D. TANRE, S. BOUFFIES, P. CHAZETTE, J.L. ROUJEAN (1997): Retrieval of atmospheric properties and surface bi-directional reflectances over land from POLDER/ADEOS, *Journ. Geophys. Res.*, 102, 17023-17038
- LEVELT, P.F., B.V. KHATTATOV, J.C. GILLE, G.P. BRASSEUR, X.X. TIE, J.W. WATERS (1998): Assimilation of MLS ozone measurements in the global three-dimensional chemistry transport model ROSE, *Geophys. Res. Lett.*, 25 (24), 4493-4496
- LIDE, D.R. (Ed., 1999): Handbook of Chemistry and Physics, CRC netbase 1999, CRS Press LLC, CD-ROM Version 1.1, ISBN 1-800-272-7737
- LIMBECK, A., H. PUXBAUM, L. OTTER, M.C. SCHOLLES (2001): Semivolatile behavior of dicarboxylic acids and other polar organic species at a rural background site (Nylsley, RSA), *Atm. Env.*, 35, 1853-1862
- LIU, D.C., J. NOCEDAL (1989): On the limited memory BFGS method for large scale optimization, *Mathematical Programming*, 45, 503-528
- LOADER, A., D. MOONEY, M. COGHLAN (2005): UK Smoke and Sulphur Dioxide Network 2003, Report Nr. AEAT/ENV/R/1900/Issue 1, Juli 2005, herausgegeben von AEA Technology plc., Netcen division, Harwell Business Centre, Didcot, Oxon, OX11 0QJ, UK
- LORENC, A. (1981): A global three-dimensional multivariate statistical interpolation scheme, *Mon. Wea. Rev.*, 109, 701-721
- LORENC, A. (1986): Analysis method for numerical weather prediction, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 112, 1177-1194
- MAZUREK, M., M.C. MASONJONES, H.D. MASONJONES, L.G. SALMON, G.R. CASS, K.A. HALLOCK, M. LEACH (1997): Visibility-reducing organic aerosols in the vicinity of Grand Canyon National Park: Properties observed by high resolution gas chromatography, *Journ. Geophys. Res.*, Vol 102, No D3 3779-3793
- MEMMESHEIMER, M., H.HASS, J. TIPPKKE, A. EBEL (1995): Modeling of episodic emission data for Europe with the EURAD emission model EEM, in: Proceedings of the International Speciality Conference Regional Photochemical Measurement and Modeling Studies, Vol 2, ed. A. RANZIERI, P. SOLOMON, 495-499, Air and Waste Management Association, San Diego, USA
- MEMMESHEIMER, M., E. FRIESE, H.J. JAKOBS, H. FELDMANN, A. EBEL, M.J. KERSCHGENS (2004): Long-Term Simulations of Particulate Matter in Europe on different scales using sequential nesting of a regional model, *Journal of Environment and Pollution*, in press
- MIE, G. (1908): Beiträge zur Optik trüber Medien, *Ann. Phys.*, 25, 377-445
- MISHCHENKO, M.I., L.D. TRAVIS, A. MACKE (1999): T-matrix method and its applications, in: Mishchenko, M.I., J.W. Hovenier, L.D. Travis (Hg.), *Light Scattering by Nonspherical Particles: Theory, Measurements, and Applications*, 147-172, Academic Press, San Diego, USA
- MOULIN, C., H. R. GORDON, V. F. BANZON, R. H. EVANS (2001): Assessment of Saharan dust absorption in the visible from SeaWiFS imagery, *Journ. Geophys. Res.*, 106, D16, 18239-18249

- NAGEL, M.R., H. QUENZEL, W. KWETA, P. WENDLING (1978): Daylight Illumination-Color-Contrast-Tables, Academic, San Diego, Calif., USA
- NIERADZIK, L., H. ELBERN (2006): Variational assimilation of combined satellite retrieved and in situ aerosol data in an advanced chemistry transport model, *Proc. ESA Atmospheric Science Conf.*, 8.-12. Mai 2006, ESA-ESRIN, Frascati, Italien
- NIU, T., S.L. GONG, G.F. ZHU, H.L. LIU, X.Q. HU, C.H. ZHOU, Y.Q. WANG (2007): Data assimilation of dust aerosol observations for CUACE/Dust forecasting system, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 7, 8309-8332
- O'DOWD, C.D., J.L. JIMINEZ, R. BAHREINI, R.C. FALGAN, J.H. SEINFELD, K. HAEMERL, L. PIRJOLA, M. KULMALA, S.G. JENNINGS, T. HOFFMANN (2002): Marine aerosol formation from biogenic iodine emissions, *Nature*, vol 417, 6.6.2002, 632-636
- OUIMETTE, J.R., R.C. FLAGAN (1982): The extinction coefficient of multicomponent aerosols, *Atmos. Environ.*, 16 (10), 2405-2419
- PALMER, K. F., D. WILLIAMS (1975): Optical constants of sulphuric acid, application to the clouds of Venus, *Appl. Opt.*, 14, 208-219
- PARRISH, D., J. DERBER (1992): The National Meteorological Center's spectral statistical analysis scheme, *Mon. Wea. Rev.*, 120, 1747-1763
- PATTERSON, E.M., D.A. GILLETE, B.H. STOCKTON (1977): Complex index of refraction between 300 and 700 nm for Saharan aerosol, *Journ. Geophys. Res.*, 82, 3153-3160
- PILINIS, C., S.N. PANDIS, J.H. SEINFELD (1995): Sensitivity of direct climate forcing of atmospheric aerosols to aerosol size and composition, *Journ. Geophys. Res.*, 100 (D9), 18739-18754
- PIO C., C. ALVES, A. DUARTE (2001): Organic components of aerosols in a forested area of central Greece, *Atm. Env.*, 35, 389-401
- POPP, T. (1995): Correcting atmospheric masking to retrieve the spectral albedo of land surfaces from satellite, *Int. J. Rem. Sens.*, 16, 3483-3508
- PUTAUD, J.-P. und 29 Ko-Autoren (2003): A European aerosol phenomenology, Report der Europäischen Kommission EUR 20411 EN, <http://ccu.jrc.int/Publications>
- QUENZEL, H., H. MUELLER (1978): Optical Properties of Single Mie Particles: Diagrams of Intensity-, Extinction- Scattering- and Absorption Efficiencies, Wiss. Mit. Nr. 34, Universität München, Deutschland
- RADZI BIN ABAS, M., B.R. T. SIMONEIT (1996): Composition of extractable organic matter of air particles from Malaysia: Initial Study, *Atm. Environm.*, Vol 30, No 15, 2779-2793
- RASCH, P.J., N. M. MAHOWALD, B.E. EATON (1997): Representations of transport, convection, and the hydrologic cycle in chemical transport models: Implications for the modeling of short-lived and soluble species, *Journ. Geophys. Res.*, 102 (28), 28127-28138
- RASCH, P.J., W.D. COLLINS, B.E. EATON (2001): Understanding the Indian Ocean Experiment (INDOEX) aerosol distributions with an aerosol assimilation, *Journ. Geophys. Res.*, 106 (D7), 7337-7355
- ROTHER, T., K. SCHMIDT (1997): The discretized Mie-formalism for electromagnetic scattering, *Progress in Electromagnetic Research*, 17, 91-183

- SARTELET, K.N., E. DEBRY, K. FAHEY, Y. ROUSTAN, M. TOMBETTE, B. SPORTISSE (2007): Simulation of aerosols and gas-phase species over Europe with the POLYPHEMUS system: Part I – Model-to-data comparison for 2001, *Atm. Env.*, 41, 6116-6131
- SAXENA, P., L.M. HILDEMAN, P.H. McMURRY, J.H. SEINFELD (1995): Organics alter hygroscopic behavior of atmospheric particles, *Journ. Geophys. Res.*, Vol 100, No D9, 18755-18770
- SCHELL, B., I.J. ACKERMANN, H. HASS, F.S. BINKOWSKI, A. EBEL (2001): Modeling the formation of secondary organic aerosol within a comprehensive air quality model system. *Journ. Geophys. Res.*, 106 (D22), 28275-28293
- SCHNAITER, M., H. HORVATH, O. MÖHLER, K.-H. NAUMANN, H. SAATHOFF, O.W. SCHÖCK (2003): UV-VIS-NIR spectral optical properties of soot and soot-containing aerosols, *Journ. Aerosol Science*, 34, 1421-1444
- SEINFELD, J.H., S.N. Pandis (1998): Atmospheric chemistry and physics: From air pollution to climate change, John Wiley & Sons, New York, USA
- SIMONEIT, B.R.T. (1986): Characterization of Organic Constituents in Aerosols in Relation to Their Origin and Transport: A Review, *Intern. J. Environ. Anal. Chem.*, Vol 23, 207-237
- SIMONEIT, B.R.T. (1989): Organic Matter of the Troposphere – V: Application of Molecular Marker Analysis to Biogenic Emissions into the Troposphere for Source Reconciliations, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 8, 251-275
- SINYUK, A., O. TORRES, O. DUBOVIK (2003): Combined use of satellite and surface observations to infer the imaginary part of refractive index of Saharan dust, *Geophys. Res. Lett.*, 30, 2, 1081, doi 10.1029/2002GL016189
- SLOANE, C.S. (1984): Optical properties of aerosols of mixed composition, *Atm. Env.*, 18, 871-878
- SOKOLIK, I.N., D. M. WINKER, G. BERGAMETTI, D.A. GILETTE, G. CARMICHAEL, Y.J. KAUFMAN, L.GOMES, L. SCHUETZ, J.E. PENNER (2001): Introduction to special section: Outstanding problems in quantifying the radiative impacts of mineral dust, *Journ. Geophys. Res.*, 106 (D16), 18015-18027
- STOCKWELL, W.R., P. MIDDLETON; J. CHANG, X. TANG (1990): The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling, *Journ. Geophys. Res.*, 95 (D10), 16343-16347
- STOCKWELL, W.R., F. KIRCHNER, M. KUHN (1997): A new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling, *Journ. Geophys. Res.*, 102 (D22), 25847 - 25879
- STOWE, L. L., A.M. IGNATOV, R.R. SINGH (1997): Development, validation, and potential enhancements to the second-generation operational aerosol product at the National Environmental Satellite, Data, and Information Service of the National Oceanic and Atmospheric Administration, *Journ. Geophys. Res.*, 102, 16923-16934
- TALAGRAND, O. (1997): Assimilation of Observations, an Introduction, *Journ. Meteor. Soc. Japan*, 75 (1B), 191-209
- TANRE, D., Y.J. KAUFMAN, M. HERMAN, S. MATTOO (1997): Remote Sensing of aerosol properties over oceans using the MODIS/EOS spectral radiances, *Journ. Geophys. Res.*, 102, 16971-16988

- TOON, O. B., J.B. POLLOCK, B. N. KHARE (1976): The optical constants of several atmospheric aerosol species: ammonium sulfate, aluminium oxide and sodium chloride, *J. Geophys. Res.*, 81, 5733-5748
- TORRES O., P.K. BHARTIA, J.R. HERMAN, Z. AHMAD, J. GLEASON (1998): Derivation of aerosol properties from satellite measurements of backscattered ultraviolet radiation: Theoretical basis, *Journ. Geophys. Res.*, 103, 17099-17110
- TORRES, O., P. K. BHARTIA, J. R. HERMAN, A. SINYUK, P. GINOUX, B. HOLBEN (2002): A long-term record of aerosol optical depth from TOMS observations and comparison to AERONET measurements, *Journ. Atmos. Sci.*, 59, 398-413
- TORRICELLA, F., E. CATTANI, M. CERVINO, R. GUZZI, C. LEVONI (1999): Retrieval of aerosol properties over the ocean using Global Ozone Monitoring Experiment measurements: Method and application to test cases, *Journ. Geophys. Res.*, 104, 12085-12098
- TSAPAKIS, M., E. LAGOUDAKI, E.G. STEPHANOU, I.G. KAVOURAS, P. KOUTRAKIS, P. OYOLA, D.v. BAER (2002): The composition and sources of PM_{2.5} organic aerosol in two urban areas of chile, *Atm. Env.*, 36, 3851/3863
- TURPIN, B.J., P. SAXENA, E. ANDREWS (2000): Measuring and simulating particulate organics in the atmosphere: problems and prospects, *Atm. Env.*, 34, 2983-3013
- VAN LOON, M., P. J. H. BUILTJES, A. SEGERS (2000): Data assimilation of ozone in the atmospheric transport chemistry model LOTOS, *Env. Mod. and Softw.*, 15, 603-609
- VAN DE HULST, H.C. (1957): Light Scattering by Small Particles, John Wiley & Sons, New York
- VAN VELTHOVEN, P., P. BUILTJES, M. SCHAAP (2004): An assessment of assimilation techniques presently available, as well as an assessment of the requirements for a fully functional aerosol assimilation system, deliverable report D21 of EU DAEDALUS project, <http://www-loa.univ-lille1.fr/Daedalus/Daedalus/index.html>
- VAUTARD, R., P.H. BUILTJES, P. THUNIS, C. CUVELIER, M. BEDOGNI, B. BES-SAGNET, C. HONORE, N. MOUSSIOPOULOS, G. PIROVANO, M. SCHAAP, R. STERN, L. TARRASON, P. WIND (2007): Evaluation and intercomparison of Ozone and PM₁₀ simulations by several chemistry transport models over four European cities within the CityDelta project, *Atm. Env.*, 41, 173-188
- VEEFKIND, J. P., G. de LEEUW, P.A. DURKEE (1998): Retrieval of aerosol optical depth over land using two-angle view satellite radiometry during TARFOX, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 3135-3138
- VERVER, G.H.L., J.S. HENZING, G. De LEEUW, C. ROBLES-GONZALEZ, P.F.J. VAN VELTHOVEN (2002): Aerosol retrieval and assimilation (ARIA), final report, KNMI publication 200, ISBN 90-369-2223-2
- WANG, J., S.A. CHRISTOPHER, J.S. REID, H. MARING, D. SAVOIE, B.H. HOLBEN, J.M. LIVINGSTON, P. RUSSELL, S.K. YANG (2003): GOES 8 retrieval of dust aerosol optical thickness over the Atlantic Ocean during PRIDE, *Journ. Geophys. Res.*, 108, doi: 10.1029/2002JD002494, 8595-8609
- WANG, J., U.S. NAIR, S.A. CHRISTOPHER (2004a): Assimilation of satellite-derived aerosol optical thickness and online integration of aerosol radiative effects in a mesoscale model, 13th Conference on Satellite Meteorology and Oceanography, 20 – 23 September 2004, Norfolk, USA

- WANG, J., U. NAIR, S. CHRISTOPHER (2004b): GOES-8 aerosol optical thickness assimilation in a mesoscale model: Online integration of aerosol radiative effects, *Journ. Geophys. Res.*, 109 (D23203), doi: 2004JD004827
- WARSCHEID, B. (2001): Massenspektrometrische Untersuchungen zur chemischen Charakterisierung sekundärer organischer Aerosole und ihrer Bildungsprozesse in der Troposphäre, Dissertation, Universität Dortmund
- WARSCHEID, B., T. HOFFMANN (2001) On-line measurements of alpha-pinene ozonolysis products using an atmospheric pressure chemical ionisation ion-trap mass spectrometer, *Atm. Env.*, 35, 2927-2940
- WHITBY, K.T., G.M. SVERDRUP (1973): California aerosols: Their physical and chemical characteristics, *Adv. Environ. Sci. Technol.*, 10, 477-517
- WHITBY, K.T. (1978): The physical characteristics of sulfur aerosol. *Atmos. Environ.*, 12, 135-159
- YASSAA, N., B. Y. MEKLATI, A. CECINATO, F. MARINO (2001): Chemical characteristics of organic aerosol in Bab-Ezzouar (Algiers). Contribution of bituminous product manufacture, *Chemosphere*, 45, 315-322
- YU, H., R.E. DICKINSON, M. CHIN, Y.J. KAUFMAN, B.N. HOLBEN, I.V. GEOGDZHAYEV, M.I. MISHCHENKO (2003): Annual cycle of global distributions of aerosol optical depth from integration of MODIS retrievals and GOCART model simulations, *Journ. Geophys. Res.*, 108 (D3), 4128, doi: 10.1029/2002JD002717

Danksagung

Zunächst möchte ich Priv.-Doz. Dr. Hendrik Elbern vom Rheinischen Institut für Umweltforschung RIU an der Universität zu Köln und des meteorologischen Instituts der Universität zu Köln für die konstruktive Betreuung meiner externen Promotionsarbeit und den Zugang zum EURAD-CTM und verschiedenen variationellen Assimilationsalgorithmen während meiner Doktorarbeit danken.

Mein Dank gilt ebenfalls den RIU-Kollegen Dr. Michael Memmesheimer, Dr. Hermann Jacobs, Dr. Elmar Friese und Lars Nieradzick für ihre immer bestehende Bereitschaft meine Fragen zu Details und Hintergründen des EURAD-Modellsystems zu beantworten und Beispieldatensätze bereitzustellen.

Im DLR danke ich Priv.-Doz. Dr. Michael Bittner, der mir den Zugang zu Daten und Prozessierkapazitäten des DFD ermöglichte. Außerdem danke ich Dr. Thomas Holzer-Popp, der mich fachlich in allen Fragen der Satellitenbeobachtungen und der Methodenentwicklung für die optisch-physikalische Seite des Beobachtungsoperators betreut hat. Des Weiteren danke ich den DLR-Kollegen Dr. Hanne Breitzkreuz und Dmytro Martynenko, die mir durch die Nutzung meiner Algorithmen wertvolles Feedback geben konnten.

Für die Bereitstellung von Bodenmessungen möchte ich den Verantwortlichen des UK Black Smoke und Sulphur Dioxide Netzwerks (insbesondere Alan Charlton von der Nutzerbetreuung) und der Cost633-Datenbank (Jean Philippe Putaud vom JRC/EU und Xavier Querol vom CSIC, Spanien) danken. Mein Dank geht ebenfalls an die für einzelne AERONET-Stationen Verantwortlichen Ana Maria Silva, Anatoli Chaikovsky, Andrew Clive Banks, Arnon Karnieli, Bertil Hakansson, Brent Holben, Christoph Kleefeld, Christophe Francois, Didier Tanré, Gian Paolo Gobbi, Gilbert Sappe, Giuseppe Zibordi, Hammad Benchekroun, Jean-Francois Leon, Jens Boesenberg, Kevin Ruddick, Luigi Alberotanza, Maria Rita Perrone, Natalia Chubarova, Olavi Kärner, Paulo Artaxo, Peter Koepke, Philippe Goloub, Rachel T. Pinker, Roland Doerffer, Serge Despiau, Sergio Pugnaghi, Spyros Rapsomanikis und Victoria E. Cachorro Revilla und die für EMEP-Stationen Verantwortlichen Alexey Ryaboshapko, Arien Stolk, Barbara Obminska, Cinzia Perrino, Iraida Luylo, Laszlo Haszpra, Lutfü Kylyclar und Wenche Aas.

Die verwendeten Rohdaten des ERS-2 und des ENVISAT-Satelliten wurden von der European Space Agency im Rahmen der AO-Projekte SENECA und VA-ENVISAT bereitgestellt und von Dr. Thomas Holzer-Popp mit Hilfe des SYNAER-Verfahrens im Rahmen des EU-Projekts HELIOSAT-3 und des ESA-Projekts GSE-PROMOTE aufbereitet.

Mein herzlicher Dank geht auch an meinen Mann und meine Familie, die mich in der nebenberuflichen Promotionszeit in vielfältiger Form unterstützt haben.

Ich versichere, dass ich die von mir vorgelegte Dissertation selbstständig angefertigt, die benutzten Quellen und Hilfsmittel vollständig angegeben und die Stellen der Arbeit – einschließlich Tabellen, Karten und Abbildungen –, die anderen Werken im Wortlaut oder dem Sinn nach entnommen sind, in jedem Einzelfall als Entlehnung kenntlich gemacht habe; dass diese Dissertation noch keiner anderen Fakultät oder Universität zur Prüfung vorgelegen hat; dass sie - abgesehen von unten angegebenen Teilpublikationen – noch nicht veröffentlicht worden ist sowie, dass ich eine solche Veröffentlichung vor Abschluss des Promotionsverfahrens nicht vornehmen werde. Die Bestimmungen der Promotionsordnung sind mir bekannt. Die von mir vorgelegte Dissertation ist von Priv.-Doz. Dr. Hendrik Elbern betreut worden.

Veröffentlichte Teilpublikationen:

T. Holzer-Popp, M. Schroedter-Homscheidt, H. Breitkreuz, D. Martynenko, L. Klüser, Synergetic aerosol retrieval from SCIAMACHY and AATSR onboard ENVISAT, Atmos. Chem. Phys., 8, 7651-7672, 2008

Lebenslauf

Name: Marion Schroedter-Homscheidt, geb. Schroedter
Geburtsdatum: 25. Februar 1972
Geburtsort: Bonn

Staatsangehörigkeit: Deutsch

Schulbildung:

1978 - 1982 Beethoven-Grundschule, Bonn
1982 - 1991 Gymnasium Otto-Kühne-Schule, Bonn
Abitur am 13. Juni 1991

Studienverlauf:

1991 – 1997 Universität Karlsruhe
Studiengang Diplom-Meteorologie
Vordiplom am 3. November 1993
Diplomzeugnis am 10. November 1997

Beruflicher Werdegang:

1.1.1998 – heute

Wissenschaftliche Mitarbeiterin
Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V.
Deutsches Fernerkundungsdatenzentrum
Oberpfaffenhofen, 82234 Wessling

Arbeitsschwerpunkte: Aerosole, Luftqualität, Energiemeteorologie

